
UNIVERSIDAD AUTÓNOMA DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA DE MATERIALES

ESTUDIO SNOM DEL CONFINAMIENTO ÓPTICO EN ESTRUCTURAS FOTÓNICAS

Memoria presentada por:
Jorge Lamela Prieto
para optar al grado de:
Doctor en Ciencias Físicas

Directores de tesis:
Francisco Jaque Rechea
Ginés Lifante Pedrola

Madrid, 15 de junio de 2010

A mi madre, Pilar

A Yolanda

*Nunca se alcanza la verdad total,
ni nunca se está totalmente alejado de ella*

Aristóteles (384 AC-322 AC) Filósofo griego.

Agradecimientos

Quien piense que realizar una tesis doctoral es un trabajo fácil o nimio, se equivoca de principio a fin. Una memoria de tesis doctoral requiere mucho esfuerzo y algún sacrificio, por eso lo más importante es estar rodeado de gente que te apoye y ayude cuando lo necesitas, haciendo más fácil el camino recorrido. Es por ello que me gustaría plasmar aquí mi agradecimiento a todas esas personas que han estado conmigo, porque aunque las palabras se las lleve el viento, es importante decirlas y para la gente es importante oírlas.

En primer lugar querría agradecer a mi director de tesis, Francisco Jaque (Paco), todo lo que ha hecho por mí, sin él esta tesis no existiría. Paco ha sido el alma y “corazón” del trabajo presentado, no sólo echando horas en el laboratorio o trabajando con las simulaciones teóricas (desde el despacho, desde casa, desde Escocia,...), sino enseñándome la manera de enfrentarme a cada problema que surgía (no sólo científico), apoyándome y animándome cada día y mostrándome lo gratificante que puede ser llevar una vida dedicada a la ciencia. Paco, desde el respeto decirte que nunca has sido un jefe para mí, simplemente un maestro.

Y como no nombrar en este primer punto a Ginés Lifante, codirector de la tesis y la “facción” más crítica de todo el trabajo realizado. De Ginés he aprendido lo importante que es plantearse cada resultado obtenido y sobre todo estar seguro de que el trabajo está correctamente realizado. Además sin él no habría existido el obligatorio auxilio de las simulaciones teóricas para explicar los resultados obtenidos. Si alguna vez llego a tener tú seguridad Ginés, nadie me hará dudar de lo que sé, de lo que soy o de lo que tengo, Gracias.

También me gustaría agradecer al resto de profesores del grupo AMIGO su ayuda y los buenos momentos compartidos tanto en la universidad, como en los viajes científicos realizados: a Eugenio Cantelar, que más que un profesor ha sido un compañero en el día a día aunque no compartiésemos el laboratorio y que me ha enseñado que aunque la ciencia sea nuestra vida, siempre se puede compartir con otras aficiones (por cierto Jerusalén no habría sido lo mismo sin tu pasión por lo árabe); a

Fernando Cussó, cuya templanza y sosiego le permiten afrontar cualquier reto desde la tranquilidad, y del que he podido aprender lo importante de las relaciones personales en cualquier ámbito profesional (¿quién habría sido capaz de juntar un grupo tan heterogéneo como el MICROSERES si no tú?); y en especial a Daniel Jaque (Dani) aunque no pertenezca al grupo, por su inabarcable capacidad de trabajo, cuyo empuje me golpeo de lleno y me ha brindado la inercia necesaria para subir el primer peldaño si quiero continuar en la ciencia (nadie me ha dado estos años tanto trabajo para hacer como tú, gracias).

Por supuesto no puedo dejar de mencionar a tres personas más de este grupo AMIGO con las que he compartido estos años en la universidad. Por un lado a Cristina Roldán, mucho más que una gestora de proyectos, que siempre ha tenido la voluntad de intentar ayudar en cualquier cosa que necesitase (gracias por pegarte para que nos pagasen las cosas). Por otro lado a Jorge Barrio, compañero y sustituto en el manejo del SNOM, que contribuyó a hacer más llevaderas las interminables horas en el laboratorio. Y especialmente a Marta Quintanilla, compañera desde 4º de carrera, con la que tengo una relación que va más allá de lo estrictamente profesional. Juntos hemos compartido ratos en el laboratorio, pensamientos científicos y unos cuantos viajes de trabajo (Granada, Braga, Lyon, Glasgow...), pero principalmente hemos compartido los descansos en las medidas, los ratos de las comidas y alguna que otra juerga los fines de semana. Marta no eres una compañera, eres una amiga.

Pero hay más gente del departamento a la que me gustaría dar las gracias, tanto por que han compartido conmigo su experiencia en la investigación y en la física e incluso hemos realizado medidas conjuntamente, como por su interés en mi trabajo o por sus palabras de aliento, ellos son los profesores: Pepe García Solé, la mejor persona para subirte la moral; Carmen de las Heras, con quien además de experimentos he compartido horas en el laboratorio de 3º y me ha dado la oportunidad de aprender con ella como trabajar con los estudiantes; Fernando Agulló, fuente inagotable de sabiduría; Luís Arizmendi e Iñigo Aguirre con quien he compartido numerosas horas de medidas; y Mercedes Carrascosa, que sin compartir conmigo ninguna investigación siempre ha tenido tiempo e interés para preguntarme ¿cómo lo llevas?. Gracias a todos.

Y por supuesto no podría dejar de mencionar a todos los compañeros y amigos, que han hecho que el tiempo en la universidad haya sido inolvidable. Principalmente querría mencionar a Emma Martín, compañera desde que empecé la carrera de Físicas y amiga desde hace ya muchos años que siempre ha tenido palabras amables que decirme, gracias por todo. Mención especial requieren los compañeros con los que cada día he compartido la hora de la comida y que han sido un descanso y apoyo en el trabajo de cada día, por eso además de los citados Eugenio, Marta y Emma, querría dar las gracias a Airán Rodenas (he trabajado más contigo que con cualquier miembro de mi laboratorio), Pablo Molina, Pablo Díaz, Mariola Ramírez y Antonio Benayas, con vosotros he podido evadirme de los problemas y tensiones del trabajo. Y por supuesto a mis compañeros de despacho con los que desde el comienzo he compartido todo mi tiempo fuera del laboratorio, principalmente a Eva Gallardo y Javier Villarroel, que siempre han sacado tiempo para echarme una mano si se lo he pedido, resolverme una duda o darme consejo. Gracias porque tengo la sensación de que sin todos vosotros nada habría sido igual (¡¡os echare de menos!!).

También debo de dar las gracias a aquellos investigadores que me han acogido en estancias de investigación y me han ayudado en lo que han podido a pesar de mis dificultades con el idioma que a veces hacía difícil el poder entendernos bien. Además me han permitido conocer y aprender distintos puntos de vista así como formas de trabajar, lo que me ha enriquecido como persona y como investigador. Así me gustaría dar las gracias por permitirme a aprender y utilizar los sistemas de espectroscopia de sus laboratorios al profesor Andrzej Suchocki del Instituto de Física de la Academia de Ciencias polaca, por los dos meses que me acogió en su laboratorio de Varsovia, así como a la doctora Agata Kamińska por su paciencia y dedicación en el laboratorio, y al profesor Thomas Han de la Universidad de Strathclyde en Glasgow por su excelente acogida y su amabilidad.

Finalmente no podría dejar de dar las gracias a mi familia (Pedro[†], Paulina[†], Concha, Antonio[†], Paloma y Pilar). Ellos son los que desde pequeño incentivaron mi interés y mi inteligencia, y me enseñaron infinidad de cosas todas ellas desde el punto de vista de la curiosidad (lo más atractivo para un niño) y de lo ameno, porque todos vosotros aún hoy disfrutáis y seguiréis disfrutando de cada cosa nueva que aprendéis,

conocéis o descubris. Vosotros me enseñasteis a enfrentarme a las cosas que me daban miedo (aún hoy me acuerdo de los sustos de mi tío Antonio en el pasillo oscuro de casa) y a superar cualquier problema por mi mismo, gracias a vosotros hoy no me da miedo enfrentarme a ninguno de los problemas que me surgirán en la vida. Vosotros estuvisteis a mi lado en cada actividad que realizaba con paciencia y orgullo (mama, abuelo, gracias por haber ido a los partidos de baloncesto cuando era niño, a cada uno de los conciertos del coro en los que participé y a todas las competiciones de natación y haber estado siempre tan orgullosos de mi. Abuelo te habría encantado leer esta tesis) y se que nunca estaré sólo. Por vuestro ejemplo estudie ciencias, por vuestra cabezonería y empeño hice el bachillerato internacional y por vuestra culpa empecé el doctorado, gracias por quererme tanto y hacer de mi quien soy ahora.

También tengo que dar las gracias a la persona que seguramente más ha sufrido esta tesis. Ella es Yolanda y ha tenido que aguantar mis enfados, mis nervios, mis ausencias y mi cabezonería, pero siempre me ha apoyado, me ha animado y ha estado a mi lado, tanto que sé que si me empeño en irme al fin del mundo ella lo dejaría todo para venirse conmigo. No puedo decirte otra cosa más que ha valido la pena y que queda tanto por hacer juntos... Gracias.

Y por último querría reconocer de manera especial a quien más tengo que agradecer, ellas es Pilar mi madre y se lo debo todo. Te debo todo lo bueno y todo lo malo, todo lo que importa y todo lo que no. Tú eres quien más me ha enseñado (de ti he aprendido más que de cualquiera de mis profesores) y me ha hecho vivir más experiencias. Te quiero Mama, esta tesis es para ti.

Lista de los símbolos y siglas empleados en la memoria:

D_a (Diámetro de la punta de SNOM)

ϵ_0 (Permitividad eléctrica del vacío)

$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ (Campo eléctrico)

$\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ (Campo magnético)

HE (Modo híbrido. Se define como una combinación de modos TE y TM)

λ (Longitud de onda)

μ_0 (Permeabilidad magnética del vacío)

n (Índice de refracción)

P_s (Polarización espontánea)

TE (Modo transversal eléctrico)

TM (Modo transversal magnético)

AFM (*Atomic Force Microscopy*, Microscopía de Fuerzas Atómicas)

APD (*Avalanche Photodiode*, Fotodiodo de Avalancha)

BNN (Niobato de bario y sodio, $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$)

BPM (*Beam Propagation Method*, Método de Haz Propagante)

DLW (*Direct Laser Writing*, Escritura Directa con Láser)

FD-BPM (*Finite difference-BPM*, Método de diferencias Finitas)

FED (*Free Electron Density*, Densidad Libre de Electrones)

LN (niobato de litio, LiNbO_3)

LT (Tantalato de litio, LiTaO_3)

NA (*Numerical aperture*, Apertura Numérica)

PM (*Photomultiplier*, Fotomultiplicador)

SEM (*Scanning Electron Microscopy*, Microscopía Electrónica de Barrido)

SFM (*Scanning Force Microscopy*, Microscopía de Fuerzas)

SNOM (*Scanning Near-Field Optical Microscopy*, Microscopía Óptica de Campo Cercano)

STM (*Scanning Tunneling Microscopy*, Microscopía de Efecto Túnel)

STOM (*Scanning Tunneling Optical Microscopy*, Microscopía Óptica de Efecto Túnel)

SVEA (*Slowly Varying Envelope Approximation*, Aproximación de la Variación Pequeña de la Amplitud de Campo)

YAG (Óxido de itrio y aluminio, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$)

Contenido

Motivation and aims/ Motivación y objetivos.....	15
1 Microscopía óptica de campo cercano.....	25
1.1 La resolución en la microscopía óptica.....	26
1.2 La técnica de campo cercano.....	28
1.3 El elemento fundamental del SNOM. La punta.....	31
1.4 Transferencia de información desde el campo cercano al campo lejano.....	37
Referencias.....	42
2 Propagación de luz en guías de onda dieléctricas.....	45
2.1 Guías de onda. Reflexión total interna.....	46
2.2 Guías de onda planas.....	48
2.3 Guías de onda acanaladas.....	54
Referencias.....	57
3 Propagación de luz en guías de onda.	
Método de haz propagante.....	59
3.1 Propagación paraxial. La ecuación de Fresnel.....	60
3.2 Método basado en diferencias finitas.....	62
Referencias.....	67
4 Técnicas experimentales.....	69
4.1 Preparación de muestras.....	69
4.1-1 Muestras ferroeléctricas.....	70
4.1-1.1 Técnicas de fabricación de los dominios ferroeléctricos.....	72
4.1-1.2 Técnicas más relevantes de detección de los dominios ferroeléctricos.....	75
4.1-1.3 Descripción de las muestras utilizadas.....	77
4.1-2 Muestras dañadas por láser.....	79
4.1-2.1 fabricación de las guías de onda.....	81
4.1-2.2 Descripción de las muestras utilizadas.....	83

4.2 Descripción del microscopio óptico de campo cercano (SNOM) utilizado.....	84
4.2-1 Tipos de SNOM.....	84
4.2-2 Equivalencia entre transmisión y colección.....	88
4.2-3 Características del equipo utilizado.....	90
Referencias.....	102

5 Resultados experimentales y discusión.....107

5.1 Confinamiento de luz en materiales ferroeléctricos con dominios periódicos.....	108
5.1-1 El niobato de bario y sodio impurificado con neodimio.....	108
5.1-1.1 Caracterización morfológica de las estructuras.....	109
5.1-1.2 Resultados de los experimentos de difracción láser.....	111
5.1-1.3 Resultados de los experimentos de SNOM.....	114
5.1-2 El niobato de litio impurificado con erbio e iterbio.....	128
5.1-2.1 Caracterización morfológica de las estructuras.....	129
5.1-2.2 Medidas SNOM.....	132
5.1-2.3 Discusión de los resultados.....	135
5.1-3 Medidas SNOM en redes holográficas grabadas en $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$	137
5.1-4 El tantalato de litio.....	144
5.1-4.1 Caracterización morfológica de las estructuras.....	144
5.1-4.2 Resultados de los experimentos de SNOM.....	146
5.2 Confinamiento de luz en materiales modificados mediante radiación láser pulsada.....	148
5.2-1 Caracterización SNOM de guías de onda acanaladas fabricadas mediante radiación láser pulsada.....	155
5.2-1.1 Fabricación y caracterización SNOM de las estructuras de dos filamentos.....	156
5.2-1.2 Fabricación y caracterización SNOM de las estructuras ortogonales.....	162
5.2-2 Caracterización SNOM de cristales fotónicos fabricados mediante irradiación láser pulsada.....	166
Referencias.....	171

6 Conclusiones finales/6 Final Conclusions.....175

Motivation and aims

One of the emerging areas that are attracting much interest in the scientific community, as well as in the general community, is the so called nanoscience. Nanoscience is the scientific discipline that deals with the study of the properties of materials with dimensions in the range of a few nanometers or nanostructures grown on certain substrates. Some physical and chemical parameters that are of interest in investigating these nanostructures are: chemical composition and molecular structure, as well as new mechanical and optical properties associated with their small size. Therefore, in order to study these new structures is necessary to have instruments with capacity of a high spatial resolution, and the ability to examine their mechanical and optical properties.

The imaging techniques employed in the development of nanotechnology has been the electronic microscopy (Scanning Electron Microscope) and those such as scanning tunneling microscope (STM) or scanning force microscope (SFM), where both techniques reach spatial resolutions below the nanometer [1]. The problem with these techniques is that the information related to the material optical response and its dynamic properties is lost, being able to measure only the shape and size of the nanostructures. Optical microscope is the instrument that would incorporate the optical

information to the scanning electron microscopes, as well as spectroscopic characterization.

However, conventional optical microscopy presents the trouble related to the spatial resolution limit imposed by the diffraction effect, which is about $\lambda/2$ (being λ the wavelength of light used to illuminate the sample). The recent development of a technique called near-field optical microscopy (SNOM or NSOM), which combines features of traditional optical microscopy with a spatial resolution below 100 nm [2], can overcome this limit, and this it can be a suitable tool for the study of nanoscience.

This work presents a SNOM study on structures that act like optical waveguides in ferroelectric materials with periodic domains and structures made by writing with a femto-second pulsed laser beam which also confine the light.

Ferroelectric crystals with periodic and quasi-periodic domains have attracted considerable interest in recent years for their relevant applications in nonlinear optics. Classical aspects such as the production of second harmonic operation or frequency difference, as well as new research areas associated with the generation of squeezed light for optical communications or information processing have recently been developed [3, 4]. These applications make very interesting the study of ferroelectric crystals with periodic domains in order to obtain a better understand of the mechanisms involved in their formation.

In this work we present SNOM study on the optical behaviour of ferroelectric domains in BNN, LN and LT doped crystals. Periodic ferroelectric domains were made either during the growth of material or by applying an electric field on a given electrode structure deposited on one side of the samples. SNOM study has shown that the structures formed by the periodic ferroelectric domains induce a spatial modulation in the refractive index, thus acting these structures as optical super-lattices.

This work also includes a study of the optical damage, by fs pulse laser irradiation in LiNbO₃ single crystals doped with optically active ions, which enabled the foundation, through measures SNOM, the damage produced during pulsed laser irradiation.

Although the origin of changes in the dielectric crystal structure by pulsed laser irradiation is still an open question, there are already in the literature approaches to this issue [5]. So it is accepted that during pulsed laser irradiation with a fluence around the ablation threshold, where a high density of electrons is produced, "Free Electron Densities" (FEDs) in the area where the femtosecond laser pulse is focused, leading to the extraction of material in those regions where the ablation threshold is surpassed. The spatial region of the FEDs, and therefore the ablation area, depends on several factors such as the electronic thermal conductivity, the Rayleigh laser beam parameter, the state of the irradiated surface and effects involving multiple ablation processes [6]. The presence of a fast process of material loss produces intense shock waves which are propagating through the sample. So, in the vicinity of the ablation, volume atomic displacement may take place by these shock waves beyond the elastic limit of the material, producing permanent changes of the lattice [5]. Furthermore, in those regions where the ablation threshold is not reached, fast heating and cooling of the FEDs could lead to increased local disorder [7].

Since the SNOM results show that these processes leads to local changes of the refraction index, this technique can be use to develop optical waveguides. The study has been extended to different structures of confinement of light in Nd:YAG samples.

Outline of the work

The Chapter 1 of this memory starts with an introduction to the near-field optical microscopy (SNOM), involving aspects from a brief history of the SNOM technique, to discuss the critical parameters of the optical tip used in this technique as a light source or collection element. Other aspects related to the information transfer from near field to far field are also referred in this chapter.

Chapter 2 deals with the propagation of electromagnetic waves in solids, as a theoretical basis for the further study of the confinement of light in optical structures created either by the presence of periodic ferroelectric domains or by changes which are induced by light irradiation pulsed laser.

The experimental data obtained by the SNOM technique have been simulated using a method called “beam propagating” (Beam Propagation Method, BPM). Chapter 3 is dedicated to a discussion of this approach.

The description on the preparation of the samples used in the work is addressed in chapter 4, called experimental techniques. The way to create periodic ferroelectric domains in BNN, LN and LT during the crystal growth process, or by the application of electric fields, is treated at the beginning of the chapter. Also this chapter describes the technique used for the manufacture of waveguides by pulsed laser irradiation. Finally, a detailed description of the SNOM equipment was put into operation is exposed, that is a fundamental part of this work.

Chapter 5 shows the experimental results obtained by SNOM technique in materials containing periodic ferroelectric domains and waveguides fabricated by pulsed laser irradiation. The simulations, using the BPM method, are also presented and discussed. Finally, the possible mechanisms responsible for the modulation of the refractive index associated with the presence of periodic ferroelectric domains, as well as to structural changes induced by irradiation with pulsed laser light, are contemplated.

Finally, chapter 6 presents the final conclusions.

Motivación y objetivos

Una de las áreas emergentes de la ciencia que más interés está despertando, tanto en la comunidad científica como entre la población en general, es la denominada nanociencia. Se entiende por nanociencia aquella disciplina científica que se ocupa del estudio de las propiedades de materiales con dimensiones en el rango de unos pocos nanómetros o de nanoestructuras crecidas sobre determinados sustratos. Algunos de los parámetros que resultan de interés en la investigación de estas nanoestructuras son: forma y tamaño de las mismas, composición química, estructura molecular, así como nuevas propiedades mecánicas y ópticas asociadas a su tamaño. Por tanto, para el estudio de estas estructuras es necesario disponer de instrumentos que posean tanto una alta resolución espacial como la capacidad de estudiar sus propiedades mecánicas y ópticas.

Las técnicas más empleadas en el desarrollo de la nanotecnología han sido las microscopías electrónicas (*Scanning Electron Microscope*) y las de barrido, tales como el microscopio de efecto túnel (*Scanning Tunneling Microscope* STM) o el microscopio de fuerzas (*Scanning Force Microscope* SFM), con las que se han llegado a alcanzar resoluciones espaciales por debajo del nanómetro [1]. El problema surge en que con estas técnicas se pierde la información correspondiente a la respuesta óptica del material

y a sus propiedades dinámicas, pudiéndose medir únicamente la forma y tamaño de las nanoestructuras. La técnica que permitiría incorporar a la información aportada por los microscopios electrónicos y de barrido las medidas espectroscópicas, sería la microscopía óptica.

No obstante la microscopía óptica convencional presenta un problema difícil de resolver para el estudio de la nanoestructuras, y es que posee una resolución finita impuesta por el límite de difracción, que es del orden de $\lambda/2$ (siendo λ la longitud de onda de la luz utilizada para iluminar la muestra). Sin embargo, con el reciente desarrollo de la técnica denominada microscopía óptica de campo cercano (*Scanning Near-field Optical Microscopy* SNOM o NSOM), que combina las características de la microscopía óptica tradicional pero con una resolución espacial por debajo de los 100 nm [2], parece haberse abierto una ventana para acercar la microscopía óptica a la nanociencia, pudiéndose así profundizar y completar los estudios realizados en este campo científico.

En esta memoria se presenta un estudio SNOM de estructuras que se comportan como guías de onda ópticas en materiales ferroeléctricos con dominios periódicos y en estructuras que confinan la luz, y que son fabricadas mediante la escritura con un haz láser pulsado.

Los cristales con estructuras periódicas y quasi-periódicas de dominios ferroeléctricos han atraído un considerable interés en los últimos años por sus importantes aplicaciones en la óptica no lineal, tanto en aspectos clásicos como es el caso de la generación de segundo armónico o la generación de diferencia de frecuencias, como en nuevos campos de investigación asociados a la generación de luz comprimida (*squeezed light*) para comunicaciones ópticas o procesamiento de información [3, 4]. Esto hace que sea de gran interés el estudio de los dominios ferroeléctricos, a fin de conocer mejor cuáles son los mecanismos que dan lugar a su formación y que han sido a su vez de gran utilidad para entender los fundamentos físicos de la ferroelectricidad.

El presente trabajo comienza con un estudio SNOM del comportamiento óptico de los dominios ferroeléctricos periódicos en BNN, LN y LT. Los dominios ferroeléctricos periódicos fueron fabricados bien durante el crecimiento del material, bien aplicando un

campo eléctrico sobre una determinada estructura de electrodos depositados en una de las caras del cristal. El estudio SNOM ha puesto de manifiesto que las estructuras formadas por los dominios ferroeléctricos periódicos inducen una modulación en el índice de refracción, que hace que estas estructuras se comporten como superredes ópticas.

Una segunda parte de esta memoria contempla un estudio del daño óptico inducido en monocristales de LiNbO_3 impurificado con iones ópticamente activos, que ha permitido establecer las bases, mediante medidas SNOM, del daño producido durante la irradiación pulsada láser.

Aunque el origen de las modificaciones producidas por la irradiación láser pulsada en cristales dieléctricos es todavía una cuestión abierta, existen ya en la literatura aproximaciones a esta cuestión [5]. Así es aceptado que durante la irradiación láser pulsada con una fluencia alrededor del umbral de ablación, se producen una alta densidad de electrones, “Free Electron Densities” (FEDs), en la zona en que el pulso láser de femtosegundos se focaliza, dando lugar a la extracción de material en aquellas regiones en las cuales se ha sobrepasado el umbral de ablación. La extensión espacial de los FEDs, y por tanto de la zona de ablación, depende de varios factores como: la conductividad térmica electrónica, el parámetro Rayleigh del haz láser, el estado de la superficie irradiada y efectos que involucran procesos múltiples de ablación [6]. La presencia de un proceso rápido de pérdida de material produce intensas ondas de choque que se propagan por la muestra, de forma que en las vecindades del volumen de ablación puede tener lugar desplazamientos inducidos por estas ondas de choque más allá del límite elástico de dicho material, produciéndose así una compresión o dilatación permanente de la red cristalina [5]. Además, en aquellas regiones en donde no se alcance el umbral de ablación, el rápido calentamiento y enfriamiento de los FEDs podría causar un incremento del desorden local [7].

Dado que los resultados SNOM muestran que estos procesos dan lugar a cambios locales del índice de refracción, se puede utilizar esta técnica para la fabricación de guías de onda ópticas. El estudio se ha extendido a diferentes estructuras de confinamiento de luz en muestras de Nd:YAG.

Descripción del trabajo

El capítulo 1 de la memoria comienza con una introducción a la microscopía óptica de campo cercano (SNOM), contemplando aspectos que van desde una breve historia de la técnica SNOM, hasta discutir los parámetros críticos de la punta óptica utilizada en esta técnica como fuente de luz o elemento colector, o tratar la transferencia de información desde el campo cercano al campo lejano.

En el capítulo 2 se trata la propagación de ondas electromagnéticas en sólidos, como base teórica para el posterior estudio del confinamiento de la luz en estructuras ópticas creadas bien por la presencia de dominios ferroeléctricos periódicos o en guías que han sido fabricadas mediante irradiación láser pulsada.

Dado que a lo largo de la memoria los datos experimentales obtenidos mediante la técnica SNOM han sido simulados mediante el método llamado “de haz propagante” (*Beam Propagation Method*, BPM), el capítulo 3 se dedica a una exposición de este método.

La descripción sobre la preparación de las muestras utilizadas en el trabajo se trata en el capítulo 4. Se describe la obtención de dominios ferroeléctricos periódicos en BNN, LN y LT durante el proceso de crecimiento cristalino o a partir de la aplicación de campos eléctricos. Igualmente en este capítulo se explica la técnica utilizada para la fabricación de las guías de onda mediante radiación láser pulsada. Finalmente en el capítulo 4 se hace una descripción detallada del equipo SNOM que fue puesto en funcionamiento y que supone una parte fundamental del presente trabajo.

En el capítulo 5 se exponen los resultados experimentales obtenidos mediante la técnica SNOM en los materiales con dominios ferroeléctricos periódicos y en las guías de onda fabricadas mediante radiación láser pulsada. En este capítulo se presentan igualmente las simulaciones de estos resultados mediante el método BPM. Una discusión sobre los mecanismos responsables de la modulación del índice de refracción asociado con la presencia de los dominios ferroeléctricos periódicos es finalmente sugerida en este capítulo.

Finalmente en el capítulo 6 se presentan las conclusiones finales.

Bibliografía

- [1] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, E. Weibel, “7x7 reconstruction on Si(111) resolved in real space”, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 120 (1983)
- [2] D.W. Pohl, W. Denk, M. Lanz, “Optical stethoscopy image recording with resolution $\lambda/20$ ”, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984)
- [3] K. Nakamura, H. Ando, H. Shimizu, “Ferroelectric domain inversion caused in LiNbO_3 plates by heat-treatment”, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1413 (1987)
- [4] P. Xu, S.N. Zhu, X.Q. Yu, S.H. Ji, Z.D. Gao, G. Zhao, Y.Y. Zhu, N.B. Ming, “Experimental studies of enhanced Raman scattering from a hexagonally poled LiTaO_3 crystal”, *Phys. Rev. B* **72**, 064307 (2005)
- [5] X.Z. Zeng, X.L. Mao, S.B. Wen, R. Greif, R.E. Russo, “Energy deposition and shock wave propagation during pulsed laser ablation in fused silica cavities”, *J. Phys. D* **37**, 1132 (2004)
- [6] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tunnermann, B.N. Chichkov, B. Wellegehausen, H. Welling, “Ablation of metals by ultrashort laser pulses”, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2716 (1997)
- [7] A. Ródenas, D. Jaque, G.A. Torchia, C. Méndez, I. Arias, L. Roso, P. Moreno, F. Agulló-Rueda, “Femtosecond laser induced micromodifications in Nd:SBN crystals: Amorphization and luminescence inhibition”, *J. Appl. Phys.* **100**, 113517 (2006)

1 Microscopía óptica de campo cercano

Como se ha destacado en la introducción, el principal escollo para el estudio de las propiedades ópticas o espectroscópicas de las nanoestructuras, radica en que el límite de resolución de los microscopios ópticos impide la observación de estructuras de tamaños nanométricos.

Tradicionalmente se aceptó que la resolución óptica de un sistema venía determinada por el límite de difracción, lo que implicaba que quedaba limitada en última estancia por la longitud de onda de la luz utilizada para iluminar la muestra (λ). Esto supuso una barrera infranqueable en el estudio y observación de detalles de tamaños menores de $\lambda/2$. Sin embargo desde que surgió la posibilidad de realizar las observaciones en condiciones de campo cercano, se han encontrado varios caminos para acceder a los modos evanescentes del campo electromagnético, lo que ha permitido conseguir resoluciones mucho menores a la longitud de onda de la luz utilizada en los experimentos y por tanto por debajo del límite de difracción. Este es precisamente el objeto de la microscopía de campo cercano.

1.1 La resolución en la microscopía óptica

Cuando se habla de resolución en la microscopía óptica existen dos términos a tener en cuenta que son: la precisión en la posición y la resolución espacial. La precisión en la posición, como su propio nombre indica, hace referencia a la exactitud con que un objeto puede ser localizado en el espacio, mientras que por otro lado, la resolución espacial es la capacidad de distinguir dos objetos puntuales separados una cierta distancia.

Una manera de determinar el límite de resolución es mediante la “función de punto extendido” (*point-spread function*). Esta función es una medida del poder de resolución de un sistema óptico y da idea de lo que se expande una fuente puntual, de modo que cuanto más estrecha sea esta función mayor será la resolución. Esto es, si tenemos una fuente puntual radiante, la imagen que tendremos de la misma tendrá necesariamente un tamaño finito en vez de ser un punto.

Este ensanchamiento de la imagen es una consecuencia directa del filtrado espacial. Para verlo imaginemos un punto radiante en el espacio caracterizado por una función delta que tiene un espectro infinito en el espacio de frecuencias k_x , k_y . En la propagación desde la fuente al detector las componentes de altas frecuencias son filtradas y eliminadas. Normalmente el espectro completo asociado con las ondas evanescentes ($k_x^2 + k_y^2 > k_0^2$ (siendo k_0 el módulo del vector \mathbf{k}) se pierde, ya que estas ondas decaen exponencialmente en la dirección de propagación (en este caso la dirección determinada por k_z). Además no todas las componentes de las ondas planas son colectadas, lo cual conlleva una reducción aún mayor del ancho de banda. Esta reducción del espectro de frecuencias espaciales impide que se pueda reconstruir con exactitud la fuente puntual original, obteniéndose la imagen del punto con un tamaño finito [1].

Para calcular la resolución de un sistema óptico cualquiera, distingamos ahora dos fuentes puntuales separadas una distancia $\Delta r_{\parallel} = (\Delta x^2 + \Delta y^2)^{1/2}$. Cada fuente puntual puede ser identificada en base a que su “función de punto extendido” tiene una anchura

característica. Si acercamos estas fuentes puntuales, llegará un momento en que las dos “funciones de punto extendido” se solaparán, haciendo los puntos indistinguibles (ver figura 1.1). Se puede establecer entonces que dos “funciones de punto extendido” serán distinguibles sólo cuando la distancia entre sus máximos sea mayor que la anchura característica de una “función de punto extendido” individual. De este modo cuanto más estrecha sea la “función de punto extendido” mayor será la resolución del sistema.

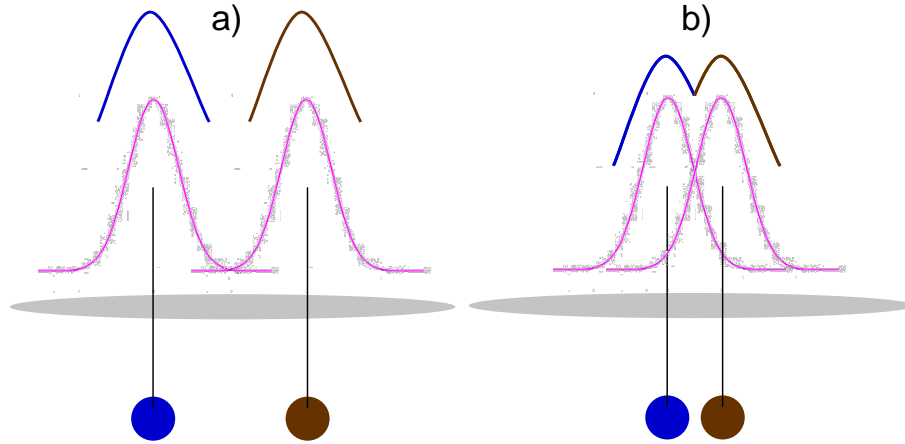


Figura 1.1 Representación esquemática de dos fuentes puntuales vistas por un microscopio, a) bien resueltas, y b) demasiado próximas para poder ser resueltas por el sistema óptico

Como el poder de resolución de un sistema óptico depende del ancho de banda del espectro de frecuencias $\Delta k_{\parallel} = (\Delta k_x^2 + \Delta k_y^2)^{1/2}$, a partir del principio de incertidumbre de Heisenberg ($\Delta p \cdot \Delta r \geq \hbar$) y dada la relación $p = \hbar k$ se puede obtener la siguiente correspondencia para la resolución de un sistema óptico:

$$\Delta k_{\parallel} \cdot \Delta r_{\parallel} \geq 1 \quad (1.1)$$

que nos permite determinar la resolución de nuestro sistema conocido el espectro de frecuencias. En el caso particular de trabajar en campo lejano, se obtiene que el límite superior para Δk_{\parallel} viene dado por el número de onda $k = (\lambda/c)n = (2\pi/\lambda)n$, ya que se han descartado todas las componentes correspondientes a las ondas evanescentes (quedarán definidas en el capítulo 2). En este caso la resolución nunca podrá ser mejor que:

$$\text{Min}[\Delta r_{\parallel}] = \lambda / 2\pi n \quad (1.2)$$

En la práctica este límite se puede definir mediante la apertura numérica del sistema (NA), que caracteriza el rango de ángulos para los cuales el sistema óptico capta luz y que se define como $NA = n \sin \theta$, siendo n el índice de refracción del medio en el que se encuentra el sistema óptico (típicamente aire $\rightarrow n = 1$) y θ la mitad del ángulo de aceptación máxima del sistema:

$$\text{Min}[\Delta r_{\parallel}] = \lambda / 2\pi NA \quad (1.3)$$

De acuerdo con la ecuación (1.1) la resolución de un sistema óptico podrá ser tan buena como se quiera siempre que el ancho de banda Δk_{\parallel} sea suficientemente grande. Para ello es necesario tener en cuenta las componentes del campo evanescente [1], ya que en caso de despreciarlas la resolución vendría dada por la ecuación 1.3 como acabamos de ver. Justamente este es el principio de la microscopía de campo cercano.

1.2 La técnica del campo cercano

Hasta ahora hemos aceptado que las frecuencias (k_x, k_y) asociadas con las ondas evanescentes se perdían en la propagación desde la fuente al detector. Dicha pérdida es la que llevaba al límite de difracción a imponer una cierta resolución espacial. La idea central de la técnica de la microscopía óptica de campo cercano es conservar las frecuencias asociadas con el campo evanescente, de modo que al hacer infinitamente grande el espectro de frecuencias se pueda obtener, en principio, cualquier resolución deseada. No obstante esto requiere un fuerte acoplamiento entre la fuente y la muestra, quedando ahora las propiedades de la fuente de luz considerablemente afectadas por la interacción luz-materia entre la muestra y la misma fuente.

Para poder extender experimentalmente el espectro de frecuencias e incluir las componentes correspondientes a las ondas evanescentes $(k_{\parallel} \geq k)$, las cuales se encuentran limitadas a la superficie de las estructuras dado que su decaimiento es

típicamente 100 nm y no se propagan ni pueden ser guiadas hasta la muestra usando elementos ópticos convencionales, es necesario que éstas ondas evanescentes sean literalmente transportadas a través de un objeto hasta las proximidades de la muestra. Esto se consigue tanto con una punta metálica adecuadamente iluminada (SNOM sin abertura), como haciendo pasar la luz por una abertura menor que la longitud de onda utilizada para la iluminación (SNOM con abertura), debiendo ser en cualquier caso la distancia entre este objeto y la muestra, típicamente 10 nm, mucho menor que dicha longitud de onda.

La restricción impuesta en la distancia entre la punta y la muestra (menor al decaimiento típico de las ondas evanescentes) es debida a que los espectros de frecuencias espaciales de los campos confinados, contienen un número muy elevado de componentes correspondientes al campo evanescente que divergen muy rápidamente. Debido a que cuanto mayor es el confinamiento lateral más rápido diverge el campo, la distancia entre la fuente y la muestra ha de ser lo más pequeña posible a fin de conseguir una resolución óptica mayor. La resolución lateral de estos microscopios (~10-300 nm) viene determinada entonces tanto por el radio de la punta o de la abertura R , como por su distancia a la superficie de la muestra D , mediante la expresión:

$$\Delta x = \sqrt{(R + D)/\kappa} \quad (1.4)$$

donde $1/\kappa$ es la longitud de decaimiento de la interacción [2].

La primera persona que propuso cómo se podía conseguir extender la resolución óptica al régimen de los nanómetros fue el científico irlandés Edward Hutchinson Synge en 1928 [3], quien sugirió iluminar la muestra haciendo pasar la luz a través de un agujero de 100 nm de diámetro realizado en una lámina metálica muy delgada. El diminuto punto de luz conseguido de esta forma iluminaría localmente la muestra, siempre y cuando la distancia entre la lámina con abertura y la muestra a estudiar no superara los 100 nm (diámetro de la abertura). La representación de dicho esquema se puede ver en la figura 1.2. La luz transmitida por la muestra debería posteriormente ser detectada por medio de un fotodetector de alta sensibilidad.

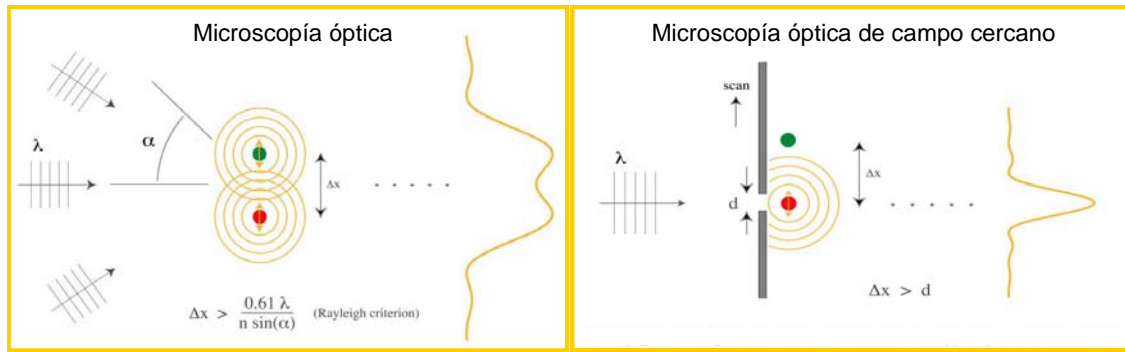


Figura 1.2 Comparación entre la resolución de un microscopio óptico convencional y la resolución en campo cercano (figura obtenida de la referencia [5])

Este concepto quedó demostrado experimentalmente cuando en 1972 los científicos E.A. Ash y G. Nicholls consiguieron, mediante un montaje similar al de Synge y utilizando una fuente de microondas ($\lambda = 3$ cm), una resolución $\lambda/60$ [4]. Sin embargo no sería hasta 15 años después en 1984, cuando Dieter W. Pohl extendería este resultado al régimen óptico [5]. El problema residía tanto en obtener un dispositivo con una abertura menor a la longitud de onda utilizada, como en situar dicha abertura a una distancia de la muestra menor al diámetro de la misma. El segundo problema quedó resuelto cuando en 1981 H. Rohrer y G. Binning desarrollaron el microscopio de efecto túnel (STM), consiguiendo acercar una punta metálica hasta una distancia de la muestra del orden de varios ángstroms [6]. El primer problema y auténtica innovación para la técnica SNOM fue resuelto por D.W. Pohl, quien logró afilar el extremo de una fibra óptica hasta que el ápice de la misma tuvo tan solo un diámetro de 150 nm. Esta fibra óptica en su parte final estaba recubierta de una capa metálica para aumentar la transmitancia de la luz a través de la abertura.

Con el desarrollo de la técnica SNOM el objetivo de extender la microscopía óptica por debajo del límite de difracción quedaba cumplida, abriendo el camino para la obtención de imágenes ópticas con resolución nanométrica (~ 10 nm en los mejores casos y sub- λ en el resto) [7], sin perder ninguna de las características de la microscopía óptica tradicional, pudiendo así realizar tanto medidas de espectroscopía local [8], como detectar fluorescencia [9] y también otras aplicaciones tales como la generación y detección de campos locales [10], medidas de espectroscopía Raman local [11], nanolitografía [12] o el estudio de propiedades magnéticas locales [13], entre otras.

No obstante el precio que se paga por la inclusión de las ondas evanescentes en el espectro de frecuencias espaciales es elevado. Por un lado la fibra óptica colocada a una distancia muy pequeña de la muestra se convierte en parte del sistema, y las interacciones entre ésta y la muestra complican considerablemente el análisis de los resultados. Además, dado que el espectro de las ondas evanescentes está solamente disponible en las proximidades de la muestra, las imágenes ópticas en campo cercano están limitadas a la superficie de estas muestras, a diferencia de las imágenes que se pueden obtener mediante la microscopía óptica convencional.

1.3 El elemento fundamental del SNOM. La punta

Como ya se ha mencionado, la resolución de un microscopio SNOM viene determinada tanto por la abertura de la punta, como por la distancia entre ésta y la superficie de la muestra a estudiar, de modo que permita extender el espectro de frecuencias hasta incluir las componentes correspondientes a las ondas evanescentes. Es por ello que a continuación se describe cómo controlar y optimizar estos parámetros.

Control de la distancia entre la punta y la muestra

Para controlar la distancia entre la punta y la muestra, la mayoría de los equipos SNOM utilizan las técnicas piezoeléctricas de aproximación empleadas en la microscopía de fuerzas atómicas, de modo que si se produce una deflexión de la palanca (o diapasón) en la que está montada la punta, ésta es detectada y la posición de la punta es corregida mediante un sistema piezoeléctrico manteniéndose constante la distancia entre la punta y la superficie de la muestra. De esta forma los equipos SNOM son capaces de registrar simultáneamente tanto la topografía de la superficie como la imagen óptica de la muestra.

Para medir la variación de la deflexión del micro-diapasón, éste se excita a la frecuencia de resonancia, la cual genera un potencial piezoeléctrico oscilante proporcional a la amplitud de oscilación. Esta señal, que se registra de manera continua, se lleva a un sistema de retroalimentación y al control electrónico que la compara con

una amplitud de referencia. A continuación se envía una señal al actuador piezoeléctrico que controla la distancia vertical, de modo que si la señal ha variado, el piezoeléctrico se alarga o encoje para conseguir, manteniendo una amplitud de oscilación constante, que no varíe la distancia entre la punta y la superficie de la muestra. Otra ventaja de esta forma de medir la señal de SNOM es que permite desacoplar fácilmente la información óptica de la topográfica, de modo que una cierta variación óptica se sabe si es debida a un cambio en la topografía de la muestra o a un cambio de alguna propiedad de la misma, facilitando la compleja tarea que es la interpretación de las imágenes obtenidas.

Control del tamaño de la punta

A fin de conseguir el mejor rendimiento posible con el equipo SNOM, la punta de la fibra debe ser tal que, por un lado el diámetro del haz láser que incida sobre la muestra sea lo más pequeño posible (para mejorar la resolución lateral) y por otro que la intensidad de luz transmitida por la abertura de la fibra sea lo más alta posible. Para ello es necesario un recubrimiento metálico de la fibra de modo que se obtenga una película completamente reflectante alrededor del cono de la punta, aumentando así la transmisión de luz en el ápice de la misma. En otras palabras, se puede describir la punta del SNOM como una guía de onda metálica rellena por un dieléctrico, donde cerca del ápice de la punta el tamaño del núcleo (*core*) dieléctrico de la guía decrece continuamente como se indica en la figura 1.3.

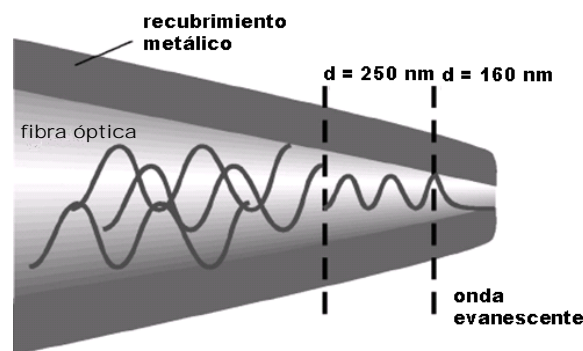


Figura 1.3 Modos de propagación en una fibra óptica afilada hasta un diámetro de 50 nm y recubierta por una capa metálica

El proceso de fabricación de las puntas de SNOM se puede dividir en dos pasos: el primero consiste en la creación de una fibra óptica terminada en punta, cuyo extremo

ha de estar afilado para alcanzar los valores antes mencionados de 50-100 nm de diámetro. Y el segundo es su recubrimiento con un metal para conseguir aumentar la transmisión de luz en la abertura de la fibra. Este recubrimiento suele ser de aluminio, oro o de una aleación de éstos, dado que son metales con una alta reflectancia en la región visible del espectro. Dicho recubrimiento se puede realizar mediante técnicas de evaporación térmica, evaporación asistida mediante haz de electrones o “*sputtering*”, entre otras [14].

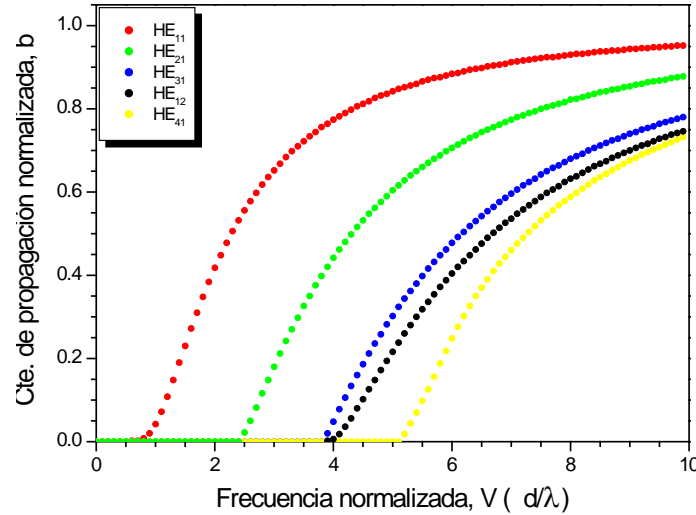


Figura 1.4 Evolución de la propagación de los diferentes modos en función del diámetro del núcleo

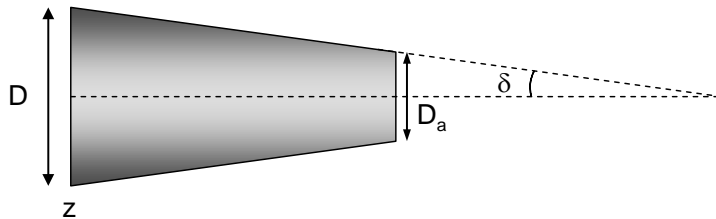
La estructura de los modos en estas guías de onda metálicas a frecuencias ópticas es función del diámetro del núcleo dieléctrico de la guía [15]. El resultado se puede interpretar como que en una guía de onda afilada, donde el diámetro del núcleo decrece gradualmente, los diferentes modos van dejando de propagarse a medida que el núcleo decrece (ver figura 1.4, donde se observa cómo la existencia de modos de propagación depende del diámetro del núcleo, d y de la longitud de onda) [16], hasta que únicamente el modo HE_{11} continúa propagándose (para más información sobre el guiado de modos ver el capítulo 2). Por ejemplo en el caso concreto de una fibra óptica recubierta por una capa de aluminio, el modo HE_{11} a la longitud de onda de 488 nm continúa propagándose en la región en la que el diámetro del núcleo varía entre los 250 y los 160 nm (ver figura 1.3). Para diámetros menores a los 160 nm el modo HE_{11} también deja de propagarse, lo que significa que su vector de onda se vuelve imaginario, de modo que el campo decae exponencialmente en la dirección de propagación. Es por

ello que la intensidad de luz que llega hasta la abertura depende de la distancia entre el punto donde el modo HE_{11} deja de propagarse y la propia abertura, distancia que viene determinada por el ángulo del cono de la punta.

Dado este comportamiento, una manera de mejorar la transmisión de una guía afilada fijado el diámetro de la abertura, consiste en aumentar el ángulo del cono de la punta [17]. Para demostrar esto veamos que la distribución de potencia a través de la punta viene expresada por:

$$P(z) = P(z_0) e^{-2 \int_{z_0}^z \alpha_{11}(z) dz} \quad (1.5)$$

donde $P(z_0)$ es la potencia de la luz incidente y α_{11} es la constante de atenuación del modo HE_{11} que depende del diámetro de la sección de la guía, de la longitud de onda que se propaga y de propiedades del material que constituye la guía en sí. En esta situación z se puede definir, de acuerdo a las relaciones geométricas mostradas en la figura 1.5, como:



$$z = \frac{D - D_a}{2 \tan \delta} \quad (1.6)$$

Figura 1.5 Representación del cono de la fibra donde se definen los parámetros geométricos para determinar z

siendo D el diámetro de la sección de la guía en el punto z , D_a el diámetro de la abertura y δ el semiángulo del cono de la punta. Si situamos z_0 en la región evanescente del modo HE_{11} , donde $\alpha_{11}(z)$ queda definida por una función exponencial de la forma $\alpha_{11}(D) = \text{Im}\{n_{\text{recubrimiento}}\} k_0 e^{-AD}$ siendo A una constante, la integración de la ecuación 1.5 resulta:

$$P(z) = P(z_0) \exp \left[a - b \left(e^{2Az \tan \delta} \right) \right] \quad (1.7)$$

donde $a(D_o)$ y $b(D_a)$ son dos constantes de integración que cumplen la relación $a < b$. De esta ecuación se observa que la potencia transmitida a través de la abertura es mayor cuanto mayor es el ángulo del cono de la punta δ (para más información acerca de la distribución de potencia en la punta de SNOM consultar la referencia [15]).

Por último indicar que de las relaciones anteriores también se deduce que la potencia transmitida a través de la abertura de la punta de SNOM depende del diámetro de la abertura en cuestión, disminuyendo dicha potencia a medida que el diámetro de la abertura decrece. Cálculos teóricos realizados por Novotny et al [1] muestran que la transmisión a través de aberturas de diámetros 100, 50 y 20 nm son respectivamente del orden de un factor $\sim 10^{-3}$, $\sim 10^{-6}$ y $\sim 10^{-12}$. Este resultado muestra el desacierto de utilizar fibras ópticas cuyos diámetros sean menores a 50-100 nm, que es en la actualidad el tamaño más comúnmente utilizado para puntas de SNOM [18]. En el caso de que el tamaño de las puntas sea grande (diámetro comparable a la longitud de onda de la luz utilizada), como ocurre con puntas deterioradas por el uso, la resolución como se vio quedará delimitada por la NA de los elementos ópticos utilizados para la colección de la luz (ecuación 1.3).

Distribución de campo

Para entender de manera sencilla y cualitativa el fenómeno físico de la transmisión de la luz a través de una abertura sin abordar cálculos electromagnéticos, se tomará que la amplitud de campo γ sólo depende de las componentes transversal k_{\parallel} y longitudinal k_z del vector de onda \mathbf{k} , esto es $\gamma(k_{\parallel}, k_z)$. Además se supondrá que la componente k_{\parallel} siempre es real, mientras que la componente k_z puede ser real o imaginaria dependiendo si se está describiendo ondas propagantes o evanescentes respectivamente. Los dos posibles valores de k_z , vendrán dados por las ecuaciones:

$$k_z = \begin{cases} \sqrt{k_0^2 - k_{\parallel}^2} & k_{\parallel} \leq k_0 \\ i\sqrt{k_{\parallel}^2 - k_0^2} & k_{\parallel} > k_0 \end{cases} \quad (1.8)$$

siendo k_0 el módulo del vector \mathbf{k} ($k_0 = 2\pi/\lambda$).

Para una longitud de onda dada, las amplitudes del campo propagante (k_z real) y del campo evanescente (k_z imaginario) dependen de manera muy importante del tamaño de la abertura D_a en relación a la longitud de onda, pudiéndose distinguir tres casos diferentes [14]:

◆ $D_a > \lambda$. En este caso el espectro angular del campo transmitido es similar al del campo incidente. Esto significa que la mayor parte del campo transmitido a través de la abertura se propaga en línea recta con un vector de onda $k_z \approx k_0$ o lo que es lo mismo $k_{\parallel} \approx 0$. Algunas componentes del campo transmitido tendrán una pequeña contribución de la componente transversal, dando lugar a una ligera divergencia del haz transmitido.

◆ $D_a \approx \lambda$. En estas condiciones la componente transversal ya no es despreciable provocando un aumento en el confinamiento lateral así como un ensanchamiento del espectro de frecuencias. Como consecuencia el campo transmitido diverge de manera importante.

◆ $D_a < \lambda$. Finalmente en esta situación (la que se corresponde con el SNOM) domina el campo evanescente ($|k_{\parallel}| > k_0$), lo que significa que el campo transmitido está muy localizado en las proximidades de la abertura en cuestión, decreciendo muy deprisa al alejarse de ella. La existencia de este campo no propagante en las proximidades de la abertura ha sido comprobado experimentalmente, por ejemplo mediante la excitación de plasmones superficiales [19]. En esta situación se pueden dar dos fenómenos a evitar. Por un lado parte del campo puede penetrar a través de los bordes de la abertura en el recubrimiento metálico, provocando un aumento efectivo de la anchura de la abertura. Y por otro pueden existir modos propagándose a través del recubrimiento de la fibra y no por el núcleo, que pueden llegar a propagarse a través del plano de la abertura desvirtuando la señal SNOM obtenida. Para evitar estas situaciones es necesario que el recubrimiento de la guía sea lo bastante grueso (ya que si es muy fino puede ocurrir que la intensidad de luz proveniente del recubrimiento sea mucho mayor que la luz emitida a través de la abertura) y que finalice en punta para reducir dicho espesor en las proximidades de la abertura.

1.4 Transferencia de información desde el campo cercano al campo lejano

La mayoría de los experimentos de SNOM se realizan en el denominado modo de iluminación (ver información sobre los tipos de SNOM en el capítulo 4), en el cual la luz es detectada y analizada a una distancia muy alejada de la punta (campo lejano). Entonces, ¿cómo es posible recuperar toda la información correspondiente al campo cercano si las ondas evanescentes no se propagan? Por ello resulta fundamental en la formación de imágenes SNOM conocer los mecanismos por los cuales las componentes del campo evanescente que están iluminando la muestra se transforman en componentes del campo propagante que transportan consigo la información acerca de la muestra. Para responder a esta pregunta consideremos el ejemplo esquematizado en la figura 1.6.

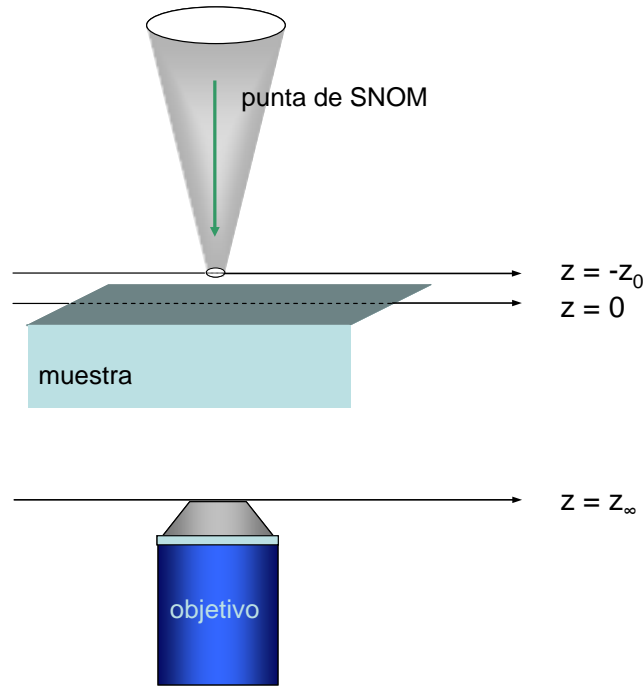


Figura 1.6 Esquema de la detección en campo lejano, de la información de una muestra iluminada por una fuente puntual en campo cercano. Las frecuencias correspondientes a las ondas evanescentes pueden ser detectadas si tenemos confinado el campo de la fuente.

Imaginemos tres planos: el plano de la fuente a una distancia $z = -z_0$ ($\ll \lambda$), que se corresponde con el extremo de una fibra óptica afilada hasta dimensiones inferiores a la longitud de onda; el plano de la muestra a $z = 0$, que es la frontera entre los dos

medios, el aire y la muestra, caracterizados por sus índices de refracción como $n_1 = 1$ y $n_2 = n$ respectivamente; y finalmente el plano de detección a $z = z_\infty (\gg \lambda)$. Usando la representación del espectro angular, por la cual se puede expresar la transformada inversa de Fourier de un campo \mathbf{E} en un plano constante ($z = \text{cte}$ por ejemplo) como:

$$\mathbf{E}(x, y, z) = \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; z) e^{i[k_x x + k_y y]} dk_x dk_y \quad (1.9)$$

se puede expresar el campo de la fuente en términos de su espectro de frecuencias:

$$\mathbf{E}_{\text{fuente}}(x, y; -z_0) = \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{\mathbf{E}}_{\text{fuente}}(k_x, k_y; -z_0) e^{i[k_x x + k_y y]} dk_x dk_y \quad (1.10)$$

Dada la proximidad entre la fuente y la superficie de la muestra, el campo de la fuente será una superposición de ondas evanescentes. Propagando dicho campo se puede determinar cual será el campo en el plano de la muestra. Para ello se utiliza la función de transferencia óptica $\hat{\mathbf{H}}$ que establece la relación lineal:

$$\hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; z) = \hat{\mathbf{H}}(k_x, k_y; z) \hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; 0) \quad (1.11)$$

donde $\hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; 0)$ es la entrada y $\hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; z)$ es la salida, mientras que la función de transferencia óptica se define como:

$$\hat{\mathbf{H}}(k_x, k_y; z) = e^{\pm i k_z z} \quad (1.12)$$

Aplicando esta relación a la ecuación 1.10 se obtiene:

$$\mathbf{E}_{\text{fuente}}(x, y; 0) = \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{\mathbf{E}}_{\text{fuente}}(k_x, k_y; -z_0) e^{i[k_x x + k_y y + k_{z1} z_0]} dk_x dk_y \quad (1.13)$$

donde $\mathbf{E}_{\text{fuente}}(x, y, 0)$ representa el campo en la superficie de la muestra antes de que ocurra ninguna interacción. Desde el momento en que se ha establecido el campo de la fuente en la superficie de la muestra, se puede determinar la interacción de cada componente evanescente por separado, obteniendo la respuesta total integrando sobre todas las ondas incidentes o lo que es lo mismo sobre todo el plano k_x, k_y .

Para continuar con el ejemplo se supondrá que la muestra tiene un espesor infinitesimal, caracterizado por una función de transmisión $T(x, y)$. Esta elección nos permite ignorar los efectos que se inducen por la topografía de la muestra, siendo el campo inmediatamente después de atravesar la muestra:

$$\mathbf{E}_{\text{muestra}}(x, y; 0) = T(x, y)\mathbf{E}_{\text{fuente}}(x, y; 0) \quad (1.14)$$

Hay que tener en cuenta que este tratamiento es una aproximación y que para realizar una descripción más rigurosa, habría que tener en cuenta la influencia de la muestra en el campo de la punta [ver por ejemplo referencia 20]. Teniendo esto presente la multiplicación de la función T por $\mathbf{E}_{\text{fuente}}(x, y; 0)$ en el espacio directo se convierte en una convolución en el espacio de Fourier. Por lo tanto el campo en la muestra se puede escribir en el espacio de Fourier como:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{muestra}}(\kappa_x, \kappa_y; 0) &= \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{T}(\kappa_x - k_x, \kappa_y - k_y) \hat{\mathbf{E}}_{\text{fuente}}(k_x, k_y; 0) dk_x dk_y \\ &= \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{T}(\kappa_x - k_x, \kappa_y - k_y) \hat{\mathbf{E}}_{\text{fuente}}(k_x, k_y; -z_0) e^{ik_{z_1} z_0} dk_x dk_y \end{aligned} \quad (1.15)$$

donde $\hat{T}(\kappa_x - k_x, \kappa_y - k_y)$ es la transformada de Fourier de la función $T(x, y)$. Ahora basta con propagar el campo en el plano de la muestra hasta el detector que se encuentra en el campo lejano, a una distancia de la misma de $z = z_{\infty}$ como se hizo anteriormente:

$$\mathbf{E}_{\text{detector}}(x, y; z_{\infty}) = \iint_{-\infty}^{\infty} \hat{\mathbf{E}}_{\text{muestra}}(\kappa_x, \kappa_y; 0) e^{i[\kappa_x x + \kappa_y y + \kappa_{z_1} z_0]} d\kappa_x d\kappa_y \quad (1.16)$$

Dado que en la expresión 1.16 aparece el término $e^{ik_z z_\infty}$ sólo las componentes correspondientes a las ondas planas alcanzan el detector. Para ver el significado de este desarrollo matemático admitamos que se puede suponer que el campo de la fuente está compuesto por un número infinito de campos parciales, cada uno de ellos con una frecuencia espacial discreta. De este modo para cada campo parcial se puede calcular la interacción con la muestra y el campo lejano resultante que alcanza el detector, siendo el resultado final la suma de todas las respuestas individuales. Para ello se renombrará la función $\hat{T}(\kappa_x - k_x, \kappa_y - k_y)$ como $\hat{T}(k'_x, k'_y)$ y se supondrá que el campo de la fuente consiste en una única frecuencia espacial $\mathbf{k}_\parallel = (k_x, k_y)$. De esta forma se observa que el espectro de frecuencias que interaccionan con la muestra y se trasladan hasta el detector es:

$$\mathbf{k}_\parallel = \mathbf{k}_\parallel + \mathbf{k}'_\parallel \quad (1.17)$$

que consiste en un simple desplazamiento en frecuencias del espectro \mathbf{k}'_\parallel . De este modo las frecuencias espaciales de la muestra correspondientes a las ondas evanescentes se combinan con las frecuencias espaciales del campo de la punta, de tal forma que el vector de onda resultante puede corresponderse con una onda propagante en el espectro angular, propagándose hasta el detector. La figura 1.7 muestra un esquema del comportamiento de las componentes propagantes y de las componentes evanescentes, de donde se deduce que:

◆ Si no hay desplazamiento únicamente las componentes propagantes alcanzarán el detector.

◆ Sin embargo si se produce un desplazamiento de \mathbf{k} (ver figura 1.7b) la ventana de detección se traslada, de manera que ahora en ella se incluyen parte de las componentes evanescentes del campo.

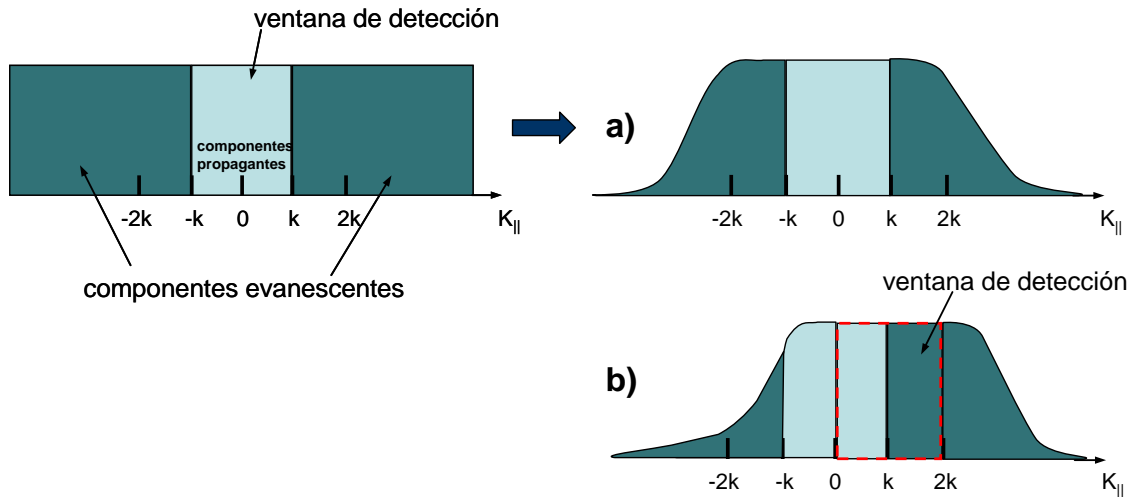


Figura 1.7 a) Representa cómo las componentes evanescentes decaen exponencialmente (a diferencia de las componentes propagantes) y esta atenuación es mayor cuanto mayor es el valor de $k_{||}$. En azul claro está representada la ventana de detección. b) Se ha producido un desplazamiento $1k$ en el espectro de frecuencias, que hace que en la ventana de detección (representada en color rojo) se incluyan parte de las componentes evanescentes del espectro de frecuencias

Para otros desplazamientos distintos al mostrado en la figura 1.7 evidentemente se incluyen otras componentes distintas de las ondas evanescentes, pudiéndose en teoría llegar a contener el espectro de frecuencias completo. De aquí se puede concluir que cuanto más confinado esté el campo de la fuente y mayor sea el ancho de banda de frecuencias espaciales (más ondas evanescentes interaccionen con la muestra), un mayor número de frecuencias espaciales de la muestra serán accesibles en el campo lejano, lo que implica que a mayor confinamiento del campo de la fuente, mejor será la resolución como era de esperar. En definitiva, iluminando en condiciones de campo cercano y detectando en campo lejano, se puede obtener información sobre la distribución del campo electromagnético en la superficie de la muestra.

Bibliografia

- [1] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of nano-optics*, (Cambridge University Press, Cambridge 2006)
- [2] H. Rohrer, “Scanning-tunneling-microscopy - a surface science tool and beyond”, *Sur. Sci.* **299**, 956 (1994)
- [3] E.H. Synge, “A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region”, *Philos. Mag.* **6**, 356 (1928)
- [4] E.A. Ash, G. Nicholls, “Super-resolution aperture scanning microscope”, *Nature* **237**, 510 (1972)
- [5] D.W. Pohl, W. Denk, M. Lanz, “Optical stethoscopy - image recording with resolution $\lambda/20$ ”, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984)
- [6] G. Binnig, H. Rohrer, “Scanning Tunneling Microscopy”, *Helv. Phys. Acta* **55**, 726 (1982)
- [7] J. Koglin, U.C. Fischer, H. Fuchs, “Material contrast in scanning near-field optical microscopy at 1-10 nm resolution”, *Phys. Rev. B* **55**, 7977 (1997)
- [8] H. Bielefeldt, I. Horsch, G. Krausch, M. Luxsteiner, J. Mlynek, O. Marti, “Reflection-scanning near-field optical microscopy and spectroscopy of opaque samples”, *Appl. Phys. A* **59**, 103 (1994)
- [9] A.J. Meixner, D. Zeisel, M.A. Bopp, G. Tarrach, “Superresolution imaging and detection of fluorescence from single molecules by scanning near-field optical microscopy”, *Opt. Eng.* **34**, 2324 (1995)
- [10] J. Azoulay, A. Debarre, A. Richard, P. Tchenio, “Field enhancement and apertureless near-field optical spectroscopy of single molecules”, *J. Microsc.* **194**, 486 (1999)
- [11] V. Deckert, D. Zeisel, R. Zenobi, T. Vo-Dinh, “Near-field surface enhanced Raman imaging of dye-labeled DNA with 100-nm resolution”, *Anal. Chem.* **70**, 2646 (1998)
- [12] G. Krausch, S. Wegscheider, A. Kirsch, H. Bielefeldt, J.C. Meiners, J. Mlynek, “Near-field microscopy and lithography with uncoated fiber tips - a comparison”, *Opt. Commun.* **119**, 283 (1995)
- [13] U. Hartmann, “High-resolution magnetic imaging based on scanning probe techniques”, *J. Magn. Magn. Mater.* **157**, 545 (1996)

-
- [14] B. Hecht, B. Sick, U.P. Wild, V. Deckert, R. Zenobi, O.J. Martin, D.W. Pohl, "Scanning near-field optical microscopy with aperture probes: Fundamentals and applications", *J. Chem. Phys.* **112**, 7761 (2000)
- [15] L. Novotny, C. Hafner, "Light-propagation in a cylindrical wave-guide with a complex, metallic, dielectric function", *Phys. Rev. E* **50**, 4094 (1994)
- [16] G. Lifante, *Integrated Photonics: Fundamentals*, (John Wiley & Sons, Chichester (2003).
- [17] L. Novotny, D.W. Pohl, B. Hecht, "Scanning near-field optical probe with ultrasmall spot size", *Opt. Lett.* **20**, 970 (1995)
- [18] D. VanLabeke, D. Barchiesi, F. Baida, "Near-field theoretical study of a magneto-optical grating", *J. Opt. Soc. Am. A* **12**, 695 (1995)
- [19] B. Hecht, H. Bielefeldt, L. Novotny, Y. Inouye, D.W. Pohl, "Local excitation, scattering, and interference of surface plasmons", *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1889 (1996)
- [20] J.J. Greffet, R. Carminati, "Image formation in near-field optics", *Prog. Surf. Sci.* **56**, 133 (1997)

2 Propagación de luz en guías de onda dieléctricas ¹

Un campo de intensa actividad científica y tecnológica hoy en día es el de la fotónica integrada, que consiste en integrar un conjunto de elementos ópticos en un único chip, en el que todos los componentes y sus interconexiones son fabricados a la vez sobre un único substrato. La ventaja de los circuitos ópticos en un único substrato frente a sistemas de componentes discretos es que los elementos tienen un menor peso y tamaño, lo que implica un menor coste de fabricación, un menor requerimiento de potencia y menos pérdidas, ya que las interconexiones entre los diferentes elementos son más cortas. Esto es posible si se dispone de estructuras que transporten la luz de manera controlada y que sirvan para establecer las conexiones entre los distintos componentes del circuito, esto es, guías de onda ópticas.

Una guía de onda se define como una estructura óptica que permite el confinamiento de la luz en su interior por medio de la reflexión total interna (ver Fig. 2.1). Las guías de onda en los circuitos de óptica integrada no son únicamente usadas para establecer conexiones entre los diferentes elementos del circuito, sino también para construir con ellas partes de estos elementos. Esto es posible debido a que si están lo

¹ Para profundizar en los desarrollos expuestos en este capítulo consultar la referencia [1]

suficientemente juntas, existe una interacción entre ellas perfectamente definida, que además puede ser controlada por un campo eléctrico externo, motivo por el cual diseñando adecuadamente el circuito, se pueden construirse divisores de potencia, multiplexores, moduladores de fase o amplitud, controladores de polarización,... [2].

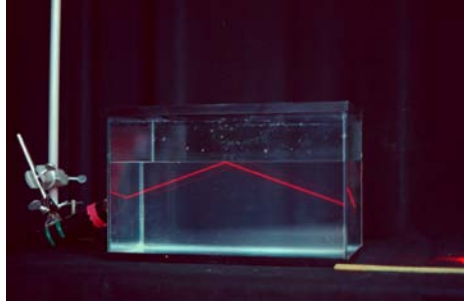


Figura 2.1 Reflexión total interna en una cubeta con agua

2.1 Guías de onda. Reflexión total interna

La condición necesaria para conseguir el confinamiento de la luz es que en las fronteras de la estructura se produzca reflexión total interna. Si se acude a ley de Snell (ec. 2.1) se puede comprobar cómo, para que exista el fenómeno de la reflexión total interna, la luz ha de pasar de un medio con índice de refracción n_1 a otro medio con índice de refracción n_2 , de modo que se cumpla la relación $n_1 \geq n_2$, como se comprueba a continuación. Partiendo de la ley de Snell:

$$n_1 \sin(\theta_i) = n_2 \sin(\theta_f) \quad (2.1)$$

donde n_1 es el índice de refracción del medio desde el que incide la luz, n_2 es el índice de refracción del medio a donde llega la luz, θ_i es el ángulo de incidencia sobre la frontera de los dos medios y θ_f es el ángulo de la luz transmitida al segundo medio (ver figura 2.2a). Si a partir de un cierto ángulo crítico de incidencia θ_c hubiese reflexión total interna, esto implicaría que $\theta_f = 90^\circ$ y que $\sin(\theta_f) = 1$, resultando la ecuación:

$$\sin(\theta_c) = \frac{n_2}{n_1} \quad (2.2)$$

Esta ecuación sólo tiene sentido físico si $n_1 \geq n_2$ e implica que la luz que incide con un ángulo $\theta \geq \theta_c$ desde un medio con índice de refracción n_1 a otro medio con índice de refracción n_2 , donde se cumple que $n_1 \geq n_2$, sufrirá reflexión total interna, quedando la luz confinada en el medio de mayor índice (ver figura 2.2b).

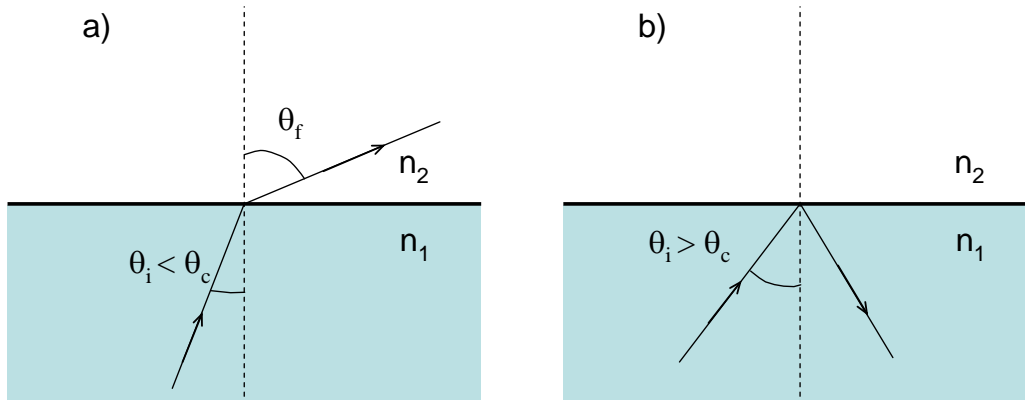


Figura 2.2 Esquema del comportamiento de la luz al transmitirse de un medio de índice de refracción n_1 a otro de índice de refracción n_2 con $n_1 \geq n_2$. a) $\theta_i < \theta_c$ y b) $\theta_i > \theta_c$

Fabricación de las guías

De este modo, para la obtención de una guía de onda es necesario disponer de un material de índice de refracción n_1 , rodeado por un material (o varios distintos como se verá en el caso de las guías de onda planas) de índice de refracción menor a n_1 , siendo la correcta elección de dicho material el fruto de numerosos trabajos de investigación existentes sobre materiales para la optimización de la fabricación de guías de onda (ver por ejemplo [3]). Según esto se pueden obtener guías de onda o bien depositando un material adecuado sobre un sustrato (de modo que al tener éste un índice de refracción mayor al del sustrato, se convierta en una estructura que guíe la luz), ó bien modificando determinadas zonas del sustrato, de modo que se aumente o disminuya el índice de refracción del mismo obteniendo estructuras adecuadas para el guiado óptico. Algunas de las técnicas de fabricación más importantes son: la difusión térmica [4]; el intercambio protónico [5]; la implantación iónica [6] o la escritura directa con láser (*Direct Laser Writing*, DLW) [7] entre otras.

Tipos de guías de onda

Las diferentes guías de onda pueden clasificarse en diferentes tipos atendiendo al confinamiento de la luz, a la geometría de la guía o a la variación de índice de refracción. Según el número de direcciones en las cuales confinan la luz, las guías de onda se dividen en unidimensionales (o guías de onda planas) y bidimensionales (guías de onda acanaladas). También se podría hablar de estructuras que confinan la luz en las tres dimensiones del espacio, los cristales fotónicos, pero en éstos al existir el confinamiento en las tres dimensiones del espacio, no hay propagación de la luz, por lo que no se suelen incluir como guías de onda.

Atendiendo a esta clasificación, las muestras objeto del presente trabajo presentarán o una red de guías de onda planas (muestras de dominios ferroeléctricos) o guías acanaladas en el caso de las muestras modificadas mediante radiación pulsada láser, motivo por el cual se describen a continuación ambos tipos de guías.

2.2 Guías de onda planas

Como acabamos de mencionar las guías de onda planas son estructuras ópticas que confinan la luz en una dimensión. En su descripción más simple, estas guías de onda están formadas por una capa dieléctrica de índice de refracción n_f , rodeada por dos medios dieléctricos, substrato y recubrimiento, cuyos índices de refracción n_s y n_c respectivamente, son menores que n_f (ver Fig. 2.3).

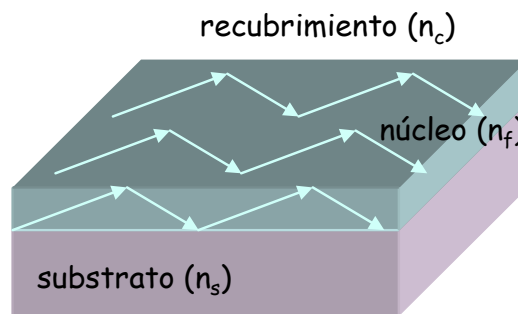


Figura 2.3 Propagación de un haz en una guía de onda plana, en la que el recubrimiento es el aire ($n_c = 1$)

Si suponemos que $n_c \neq n_s$, existen dos ángulos críticos definidos por:

$$\begin{aligned}\sin(\vartheta_{1c}) &= n_c / n_f \\ \sin(\vartheta_{2c}) &= n_s / n_f\end{aligned}\tag{2.3}$$

de modo que únicamente existirán modos guiados para el caso en que el ángulo de incidencia ϑ sea mayor que ϑ_{1c} y ϑ_{2c} .

Si se quiere conocer la distribución de campo de los modos de propagación de estas estructuras, es necesario recurrir a la teoría electromagnética de la radiación. Si tenemos en cuenta que la propagación se produce en un dieléctrico y consideramos que el medio es no magnético, lineal e isótropo las ecuaciones de Maxwell se pueden expresar como:

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \mathbf{E} &= 0 \\ \nabla \cdot \mathbf{H} &= 0 \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \varepsilon_0 n^2 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}\end{aligned}\tag{2.4}$$

donde ε_0 es la permitividad eléctrica en el vacío, μ_0 la permeabilidad magnética del vacío, n el índice de refracción del medio y $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ y $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ los campos eléctricos y magnéticos respectivamente. A partir del grupo de ecuaciones 2.4 se obtienen las ecuaciones de onda para los campos eléctrico y magnético en forma de ecuaciones de Helmholtz, las cuales vienen expresadas como:

$$\begin{aligned}\nabla^2 \mathbf{E} + \nabla \left(\frac{1}{n^2} \nabla n^2 \mathbf{E} \right) - \varepsilon_0 \mu_0 n^2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} &= 0 \\ \nabla^2 \mathbf{H} + \frac{1}{n^2} \nabla n^2 \times (\nabla \times \mathbf{H}) - \varepsilon_0 \mu_0 n^2 \frac{\partial^2 \mathbf{H}}{\partial t^2} &= 0\end{aligned}\tag{2.5}$$

Si el medio es homogéneo ($\nabla n^2 = 0$) se puede obtener una ecuación escalar para cada componente de los campos eléctrico y magnético. Además, dado que en el caso de las

guías planas el índice de refracción depende únicamente de una coordenada (por ejemplo $x \Rightarrow n = n(x)$) y escogiendo cualquiera de las otras dos componentes como la dirección de propagación (en este caso se escogerá que la dirección de propagación es en el eje z), las soluciones al grupo de ecuaciones 2.5 se pueden escribir como:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}(x)e^{i(\omega t - \beta z)} \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{H}(x)e^{i(\omega t - \beta z)}\end{aligned}\quad (2.6)$$

donde ω y β son la frecuencia angular y la constante de propagación respectivamente.

Para encontrar los modos de propagación en una guía de onda plana se estudiarán dos situaciones independientes: una cuando el campo eléctrico asociado con el modo sólo tiene una componente transversal (modos TE, transversal eléctrico); y un segundo caso cuando el campo eléctrico únicamente tiene componente paralela, en cuyo caso las soluciones se denominan TM (transversal magnético)

Modos TE

En este caso debemos encontrar la solución general para las amplitudes complejas $\mathbf{E}(x)$ y $\mathbf{H}(x)$, cuando el vector campo eléctrico únicamente posee una componente perpendicular referida al plano de incidencia (ver Fig. 2.4). De acuerdo con la geometría de la figura 2.4, la componente perpendicular del campo eléctrico es E_y (lo que implica que la componente del campo magnético $H_y = 0$), de manera que los campos eléctricos y magnéticos quedan de la forma $\mathbf{E} = (0, E_y, 0)$ y $\mathbf{H} = (H_x, 0, H_z)$.

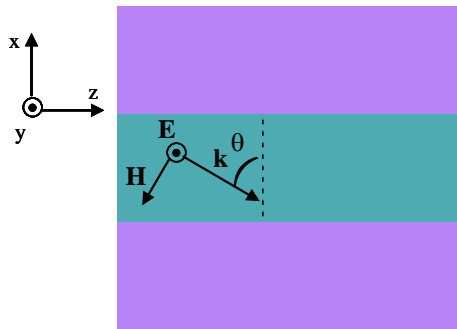


Figura 2.4 Propagación TE en una guía de onda plana, donde el vector \mathbf{k} representa el vector de onda y la dirección de propagación

Sustituyendo los campos resultantes de las ecuaciones 2.6, en las ecuaciones 2.4 se obtienen las siguientes ecuaciones:

$$\begin{aligned} H_x(x) &= -(\beta / \omega \mu_0) E_y(x) \\ H_z(x) &= (i / \omega \mu_0) dE_y(x) / dx \\ i\beta H_x(x) + dH_z(x) / dx &= -i\omega \epsilon_0 n^2(x) E_y(x) \end{aligned} \quad (2.7)$$

que relacionan las componentes E_y , H_x y H_z . Si ahora sustituimos las dos primeras ecuaciones en la tercera, obtenemos una ecuación diferencial que involucra únicamente a la componente E_y del campo eléctrico:

$$\frac{d^2 E_y(x)}{dx^2} + (k_0^2 n^2(x) - \beta^2) E_y(x) = 0 \quad (2.8)$$

donde $k_0 = 2\pi/\lambda_0$, siendo λ_0 la longitud de onda de la luz en el vacío, que se relaciona con la frecuencia angular de la forma $\omega = 2\pi c/\lambda_0$. De este modo entre las ecuaciones 2.7 y la ecuación 2.8 se obtiene la solución para los campos $\mathbf{E}(x)$ y $\mathbf{H}(x)$. Además dado que la ecuación de la que se deduce la componente $E_y(x)$ es una ecuación diferencial de segundo orden, esto conlleva la necesidad de imponer condiciones de contorno en las fronteras, lo que implica la continuidad de las componentes tangenciales de los campos \mathbf{E} y \mathbf{H} (en el caso este caso las componente E_y y H_z) en las fronteras entre el dieléctrico donde se produce el guiado de la luz y el recubrimiento o entre el dieléctrico y el sustrato.

Modos TM

Consideremos ahora el caso en el que el campo eléctrico posee sólo una componente paralela al plano de incidencia. En este caso el campo magnético ha de ser perpendicular a dicho plano, como queda representado en la figura 2.5, de manera que los campo eléctricos y magnéticos quedan de la forma $\mathbf{H} = (0, H_y, 0)$ y $\mathbf{E} = (E_x, 0, E_z)$.

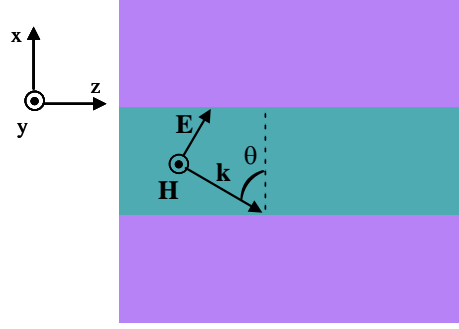


Figura 2.5 Propagación TM en una guía de onda plana

Procediendo de manera análoga a como se realizó en el apartado de modos TE, se obtienen las ecuaciones:

$$\begin{aligned} E_x(x) &= (\beta / \omega \epsilon_0 n^2) H_y(x) \\ E_z(x) &= (1 / i \omega \epsilon_0 n^2) dH_y(x) / dx \\ i\beta E_x(x) + dE_z(x) / dx &= i\omega \mu_0 H_y(x) \end{aligned} \quad (2.9)$$

de donde se puede establecer que la ecuación de onda para los modos TM es:

$$\frac{d^2 H_y(x)}{dx^2} - \frac{1}{n^2} \frac{dn^2}{dx} \frac{dH_y(x)}{dx} + (k_0^2 n^2(x) - \beta^2) H_y(x) = 0 \quad (2.10)$$

Esta ecuación es algo más compleja que la obtenida para modos TE, pero si suponemos que el índice de refracción es constante, desaparece el segundo término de la ecuación resultando:

$$\frac{d^2 H_y(x)}{dx^2} + (k_0^2 n^2(x) - \beta^2) H_y(x) = 0 \quad (2.11)$$

que es idéntica a la obtenida para modos TE, solo que ahora esta expresión es función del campo magnético en vez del campo eléctrico. Una vez más la solución de esta ecuación conlleva la imposición de unas condiciones de contorno, que implican la continuidad de las componentes transversales de los campos eléctrico y magnético en las fronteras, que en este caso son las componentes E_z y H_y .

A partir de las ecuaciones 2.8 y 2.11 se pueden encontrar las soluciones generales de los campos eléctrico y magnético para guías de onda. Para ello supondremos que el campo eléctrico para los modos TE (sería análogo para el campo magnético en el caso de modos TM) es de la forma:

$$E_y(x) = Ae^{i\gamma_j x} + Be^{-i\gamma_j x} \quad (2.12)$$

donde A y B son dos constantes que deben ser calculadas después de imponer las condiciones de contorno, j es un subíndice que indica los distintos medios de la guía (recubrimiento, núcleo y sustrato) y γ_j un parámetro que viene definido por

$$\gamma_j = \sqrt{k_0^2 n_j^2 - \beta^2} \quad (2.13)$$

y que es diferente para cada región de la guía, las cuales vendrán caracterizadas por n_j . De esta manera el campo electromagnético vendrá representado por una función sinusoidal cuando γ_j sea real y por una función exponencial cuando γ_j sea imaginaria. En particular si se procede a la resolución de la ecuación para los casos concretos de los diferentes tipos de guías planas existentes, se comprueba que el campo electromagnético es sinusoidal en el núcleo de la guía y decae exponencialmente tanto en el recubrimiento como en el sustrato (ondas evanescentes), como se aprecia en la figura 2.6.

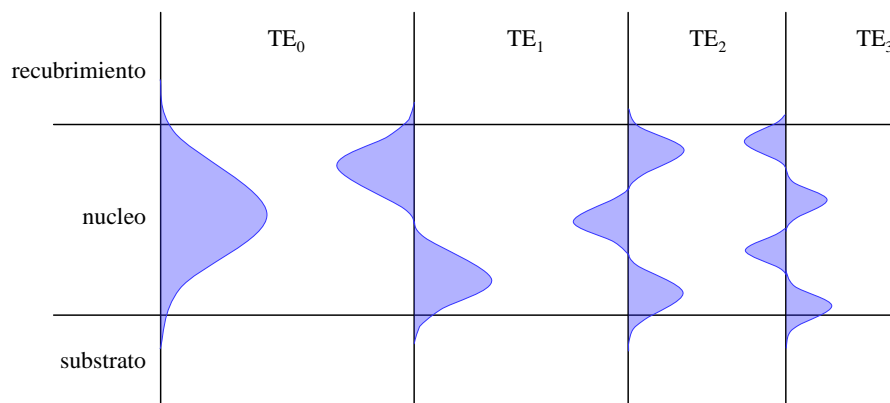


Figura 2.6 Distribución del campo eléctrico para distintos modos TE guiados en una guía de onda plana asimétrica con perfil de índice en escalón

2.3 Guías de onda acanaladas

Las guías de onda acanaladas confinan la radiación en dos dimensiones, permitiendo la propagación de la luz en una única dirección (ver Fig. 2.7), al contrario de lo que ocurría en el caso de las guías planas estudiadas en la sección anterior, en las que la luz sólo estaba confinada en la dirección perpendicular a las diferentes regiones constituyentes de la guía. De esta forma, la radiación que viaja por las guías acanaladas puede propagarse sin sufrir fenómenos de difracción (con lo que se consiguen mayores densidades de potencia), siendo posible el control de la luz a través de las propiedades físicas de los substratos de forma más eficiente. Este es el motivo por el cual las guías de onda acanaladas son fundamentales en el desarrollo de la óptica integrada, utilizándose para la fabricación de dispositivos como moduladores, conmutadores o amplificadores ópticos [8].

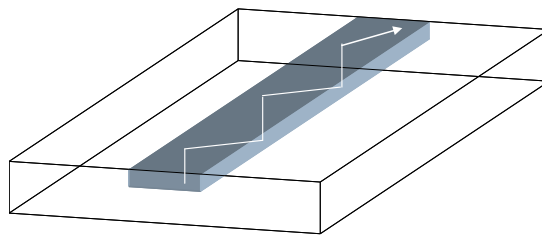


Figura 2.7 Propagación de un haz en una guía acanalada enterrada

A diferencia de lo mostrado en la sección anterior, en la que se vio como la propagación de la luz en guías de onda planas se podía describir en términos de dos polarizaciones ortogonales denominadas TE y TM, en las guías de onda acanaladas no existen modos TE y TM puros, debiéndose describir la propagación de la luz a través de modos híbridos electromagnéticos, que se pueden denominar modos TEM. Afortunadamente los modos TEM que se propagan por las guías acanaladas están fuertemente polarizados a lo largo de las direcciones x o y (siendo z la dirección de propagación; la orientación de los ejes es la de las figuras 2.4 ó 2.5) y por lo tanto es posible realizar una clasificación dependiendo de la componente mayoritaria del campo eléctrico asociado con la radiación electromagnética. Los modos cuya componente principal del campo eléctrico es a lo largo del eje x , se denominan modos E_{pq}^x (los subíndices p y q hacen referencia al número de nodos del campo eléctrico E_x en las

direcciones x e y respectivamente) y se comportan de manera similar a los modos TM de una guía de onda plana (motivo por el cual se les suele llamar modos cuasi-TM). De la misma forma los modos E_{pq}^y (tienen la componente principal del campo eléctrico en la dirección y), son muy parecidos a los modos de propagación TE en las guías de onda planas, por lo que se les denomina modos cuasi-TE.

Desafortunadamente no es posible encontrar un tratamiento exacto para la caracterización de los modos en guías acanaladas, pudiéndose realizar aproximaciones mediante métodos numéricos, que en general permiten obtener buenos resultados. Dos de los métodos más utilizados para este fin son el método Marcatili y el método de índice efectivo que se describirán a continuación de manera esquemática.

Método Marcatili

Es un método aproximado que se puede utilizar para calcular el campo y la constante de propagación en guías de onda acanaladas rectangulares. El núcleo de la guía (región I en la figura 2.8) se define como una sección rectangular con índice de refracción n_1 , rodeada de cuatro regiones homogéneas de índices de refracción n_2 , n_3 , n_4 y n_5 , todos ellos menores a n_1 .

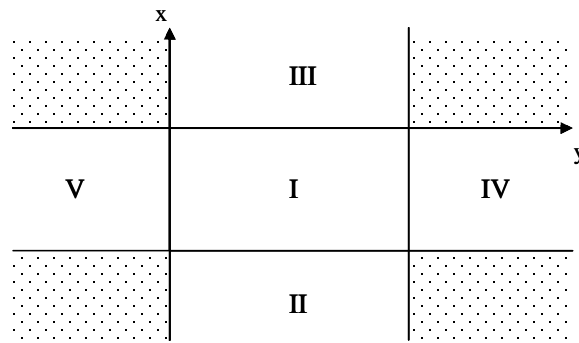


Figura 2.8 Geometría de una guía acanalada empleando el método Marcatili. Las regiones punteadas no se consideran en el análisis

Sin adentrarnos en el desarrollo matemático, si suponemos que z es la dirección de propagación y sustituimos los campos \mathbf{E} y \mathbf{H} en las ecuaciones 2.4, podemos encontrar la solución para cada región de manera independiente, prestando cuidado en imponer condiciones de contorno que impliquen la continuidad de los campos

transversales en las fronteras entre la región I y el resto de regiones, tanto para los modos cuasi-TE, como para los cuasi-TM, hallándose que si la constante de propagación del modo es $\beta \approx k_0 n_1$, el campo electromagnético se encuentra confinado principalmente en la región I (núcleo de la guía) donde las soluciones de los campos \mathbf{E} y \mathbf{H} son de la forma sinusoidal y únicamente una pequeña fracción de la energía transportada por el modo se extiende a las regiones de alrededor (II, III, IV y V), en los que las soluciones de los campos decaen exponencialmente (modos evanescentes). El campo penetra mucho menos en las regiones punteadas, motivo por el cual este método ignora dichas regiones.

Método de índice efectivo

Como se comentó el método Marcattili únicamente es válido para guías acanaladas rectangulares (recordar figura 2.8), por lo que si se está interesado en el análisis de guías acanaladas con diferentes geometrías, es necesario acudir a otros métodos aproximados, como es el método de índice efectivo.

Éste consiste en reducir el problema a una única dimensión y resolver los modos de propagación para dos guías de onda planas (desarrollo matemático en la sección 2.2), una que confine la luz en la dirección x , en la cual la coordenada y se toma como parámetro y otra guía que confine la luz en la dirección y (ver Fig. 2.9). En relación con lo explicado antes, los modos en la primera de las guías consideradas (confinamiento en la dirección x) serán similares a los modos TM de una guía de onda plana (tendrá las componentes E_x , H_y , E_z), mientras que para la segunda los modos serán TE (componentes E_x , H_y , H_z).

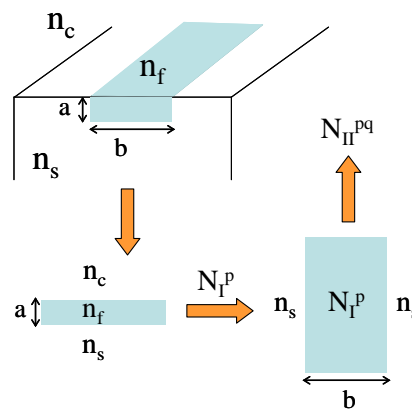


Figura 2.9 Esquema del método de índice efectivo en una guía acanalada con salto de índice

Bibliografía

- [1] G. Lifante, “Integrated photonics. Fundamentals”, ed. John Wiley & Sons (2003)
- [2] R.C. Alferness, H. Kogelnik, T.H. Wood, “The evolution of optical systems: Optics everywhere”, *Bell Labs Tech. J.* **5**, 188 (2000)
- [3] P.D. Townsend, P.J. Chandler, L. Zhang, *Optical Effects of Ion Implantation*, (Cambridge University Press, Cambridge 1994)
- [4] M. Minakata, S. Saito, M. Shibata, S. Miyazawa, “Precise determination of refractive-index changes in Ti-diffused LiNbO₃ optical-waveguides”, *J. Appl. Phys.* **49**, 4677 (1978)
- [5] J. Olivares, J.M. Cabrera, “Guided modes with ordinary refractive-index in proton-exchanged LiNbO₃ wave-guides”, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 2468 (1993)
- [6] P.J. Chandler, L. Zhang, P.D. Townsend, “Double wave-guide in LiNbO₃ by ion-implantation” *Appl. Phys. Lett.* **55**, 1710 (1989)
- [7] Y. Sikorski, A.A. Said, P. Bado, R. Maynard, C. Florea, K.A. Winick, “Optical waveguide amplifier in Nd-doped glass written with near-IR femtosecond laser pulses”, *Electron. Lett.* **36**, 226 (2000)
- [8] M. Kawachi, “Silica waveguides on silicon and their applications to integrated-optic components”, *Opt. Quantum Electron.* **22**, 391 (1990)

3 Propagación de luz en guías de onda. Método de haz propagante

En el campo de la óptica integrada uno de los aspectos fundamentales es el estudio y simulación de la propagación de ondas electromagnéticas en estructuras basadas en guías de onda. En concreto la cuestión que hay que resolver es: dada una distribución arbitraria del índice refracción $n(x, y, z)$ y para una distribución en $z = 0$ del campo $E(x, y, z = 0)$, conocer la distribución espacial de la luz $E(x, y, z)$ en un punto genérico z . En este capítulo se describe el método de haz propagante (*Beam Propagation Method*, BPM) aplicado al estudio de la propagación de la luz en dispositivos ópticos integrados, y más concretamente en guías de onda ópticas [1].

El punto de partida para el desarrollo del algoritmo del BPM comienza con el estudio de una variante de la ecuación paraxial de Helmholtz, conocida como ecuación de Fresnel, para finalizar con el método BPM basado en diferencias finitas.

3.1 Propagación paraxial. La ecuación de Fresnel

Resolver el problema de la propagación de la luz en guías de onda, considerando una geometría arbitraria, es un cuestión muy complicada como ya se mencionó en el capítulo 3, por lo que es necesario realizar algunas aproximaciones. En primer lugar, supondremos una dependencia armónica de los campos eléctricos y magnéticos considerando ondas monocromáticas con una frecuencia angular ω , de tal manera que la dependencia temporal será de la forma $e^{i\omega t}$. La ecuación que describe entonces la propagación de las ondas electromagnéticas y permite calcular el campo en cualquier punto de una guía de onda con geometría arbitraria, es la denominada ecuación de Helmholtz vectorial:

$$\nabla^2 \mathbf{E} + \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 n^2(x, y, z) \mathbf{E} = 0 \quad (3.1)$$

Aunque es posible trabajar con esta ecuación vectorial, en la mayoría de los casos se puede tratar el problema a partir de la ecuación escalar de Helmholtz, en cuyo caso la ecuación (3.1) toma la forma siguiente:

$$\nabla^2 E + \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 n^2(x, y, z) E = 0 \quad (3.2)$$

donde ahora $E = E(x, y, z)$ representa cada una de las seis componentes cartesianas de los campos magnéticos y eléctricos. El índice de refracción dado por $n(x, y, z)$, se determinará según la geometría de la guía de onda.

Si la propagación de la onda es principalmente en la dirección z positiva y las variaciones del índice de refracción lo hacen lentamente a lo largo de dicha dirección, el campo $E(x, y, z)$ se puede representar mediante una amplitud de campo compleja $u(x, y, z)$ que varía lentamente, multiplicada por un campo rápido oscilante en la dirección de propagación:

$$E(x, y, z) = u(x, y, z)e^{-iKz} \quad (3.3)$$

donde K es una constante que representa el número de onda característico, $K = n_0 \frac{\omega}{c}$ y n_0 se elige por ejemplo, como el índice de refracción del sustrato sobre el que se encuentra la guía de onda. Sustituyendo la ecuación 3.3 en la ecuación de Helmholtz escalar, se deduce que:

$$-\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + 2iK \frac{\partial u}{\partial z} = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) u + (k^2 - K^2)u \quad (3.4)$$

donde $k(x, y, z) = k_0 n(x, y, z)$, siendo $k_0 = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ el número de onda en el vacío.

Si además consideramos que la variación de la amplitud del campo es pequeña en la dirección de propagación (lo que se denomina “*Slowly Varying Envelope Approximation*”, SVEA), tendremos que $\left| \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right| \ll \left| 2K \frac{\partial u}{\partial z} \right|$, por lo que se puede despreciar el primer término de la ecuación 3.4, lo que se conoce como aproximación parabólica o aproximación de Fresnel, de forma que dicha ecuación da lugar a la expresión:

$$2iK \frac{\partial u}{\partial z} = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) u + (k^2 - K^2)u \quad (3.5)$$

conocida como ecuación de Fresnel. Ésta es la ecuación de partida para la descripción de la propagación del campo electromagnético en medios no homogéneos y en particular en estructuras de guía de ondas. Un ejemplo de cómo se utiliza esta ecuación es el caso de la propagación TE (ver capítulo 2) en guías de onda unidimensionales, donde la ecuación de Fresnel se reduce a:

$$2ik_0 n_0 \frac{\partial E_y}{\partial z} = \frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + k_0^2 (n^2(x, z) - n_0^2) E_y \quad (3.6)$$

siendo E_y la única componente no nula del campo eléctrico asociada a los modos TE en una guía 1D y $n(x, z)$ representa el índice de refracción de la estructura.

La solución a la ecuación de Helmholtz o a la ecuación de Fresnel aplicada a la propagación en guías de onda es lo que se conoce como BPM. Para resolver esta ecuación se han aplicado dos esquemas numéricos:

1- En uno de ellos, se considera la propagación de la luz como ondas planas en el dominio de frecuencias espaciales, y el efecto de la inhomogeneidad del medio se interpreta como una corrección de la fase en el dominio espacial en cada paso de propagación [2]. Dado que se utiliza la transformada de Fourier rápida para conectar los dominios espacial y espectral, a este método se le denomina transformada rápida de Fourier BPM (*Fast Fourier Transform* BPM, FFT-BPM).

2- La propagación de ondas EM en medios no homogéneos también puede ser descrita directamente en el dominio espacial por el método de diferencias finitas (*Finite difference*, FD) [3]. Esta técnica permite tanto la simulación de estructuras con alto contraste de índice, como de aquellas que varían en la dirección de propagación. El método BPM que resuelve la forma paraxial de la ecuación de onda escalar en un medio no homogéneo mediante el método de diferencias finitas, se denomina FD-BPM y es el que ha sido utilizado en el presente trabajo, por lo que se desarrollará a continuación.

3.2 Método basado en diferencias finitas (FD-BPM)

El método numérico basado en diferencias finitas descrito en esta sección se aplicará a estructuras unidimensionales (guías de onda planas). A fin de resolver la propagación en guías de onda 2D (guías de onda acanaladas, fibras ópticas, etc) utilizando el método FD-BPM, habrá que reducir éstas a estructuras de una dimensión

mediante el método de índice efectivo que se describió en el capítulo 2. Este procedimiento da muy buenos resultados en general y además ahorra mucho tiempo de cálculo. Sin embargo, también es posible desarrollar directamente otros esquemas de diferencias finitas de estructuras 2D [4].

En el método FD-BPM, la ecuación de onda escalar de Helmholtz (ecuación 3.5) en derivadas parcial se puede expresar como:

$$2iK \frac{u_j(z + \Delta z) - u_j(z)}{\Delta z} = \frac{u_{j-1}(z) - 2u_j(z) + u_{j+1}(z)}{\Delta x^2} + k_0^2(n^2 - n_0^2)u_j(z) \quad (3.7)$$

donde $u_j(z)$ es el campo óptico en la posición $(j\Delta x, z)$ con $j = 1, 2, \dots, N$. El cálculo de $u_j(z + \Delta z)$ a partir de la ecuación (3.7) es sencillo, e indica que el campo óptico $u_j(z + \Delta z)$ puede ser obtenido a partir de los valores de $u_{j-1}(z)$, $u_j(z)$ y $u_{j+1}(z)$ en una posición dada z [5]. Este método basado en diferencias finitas es exacto a primer orden, y desde un punto de vista numérico es un procedimiento condicionalmente estable, donde la condición de estabilidad viene dada por:

$$\Delta z \leq \frac{\Delta x^2}{2} K = \Delta x^2 n_0 \frac{\pi}{\lambda} \quad (3.8)$$

Por desgracia, en la práctica el valor de Δz necesario para asegurar la estabilidad es demasiado pequeño. A modo de ejemplo, para un valor de $x = 0,1$ mm y una longitud de onda de $\lambda = 1$ μm , si consideramos como referencia del índice de refracción el valor $n_0 = 1.5$, obtenemos que el paso de la propagación debe ser inferior a $z = 0,05$ μm . Teniendo esto en cuenta para una guía óptica de longitud 5 mm, necesitaríamos por tanto 10^5 pasos.

Otra manera de abordar este problema consiste en utilizar otro esquema en diferencias finitas, conocido como “diferencias hacia atrás” (*backward difference*) [5]. La ecuación escalar de Helmholtz expresada de esta manera tiene la forma:

$$2iK \frac{u_j(z + \Delta z) - u_j(z)}{\Delta z} = \frac{u_{j-1}(z + \Delta z) - 2u_j(z + \Delta z) + u_{j+1}(z + \Delta z)}{\Delta x^2} + k_0^2(n^2 - n_0^2)u_j(z + \Delta z) \quad (3.9)$$

donde este método tiene ahora la ventaja de ser incondicionalmente estable, aunque no se gane en exactitud.

Afortunadamente, hay un método, también basado en la técnica de diferencias finitas, que no es sólo incondicionalmente estable, sino que también proporciona soluciones más precisas que las de los dos métodos anteriores. Es el método llamado de Crank-Nicolson [5], que es una combinación lineal de los dos métodos de diferencias finitas que se acaban de exponer (ver figura 3.1).

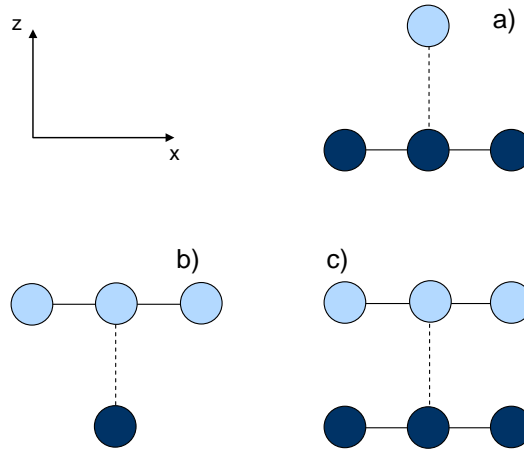


Figura 3.1 Diagrama de los tres sistemas utilizados en la simulación de la propagación de la luz basado en diferencias finitas: a) *forward difference* es exacta a primer orden y estable sólo para pasos de propagación pequeños, b) *backward difference* es estable para pasos de propagación arbitrariamente grandes, pero sólo es exacta a primer orden y c) Crank-Nicolson es exacta a segundo orden y también se mantiene estable para pasos de propagación grandes

El método de diferencias finitas siguiendo un esquema de Crank-Nicolson para resolver la ecuación de propagación paraxial, se puede representar como:

$$[2K + i\Delta z\alpha H]u(z + \Delta z) = [2K - i\Delta z(1 - \alpha)H]u(z) \quad (3.10)$$

donde el operador H se define como:

$$Hu \equiv \frac{u_{j-1} - 2u_j + u_{j+1}}{\Delta x^2} + k_0^2(n_j^2 - n_0^2)u_j \quad (3.11)$$

La expresión de este sistema en términos de diferencias finitas viene dada por la ecuación:

$$2iK[u_j(z + \Delta z) - u_j(z)] = k_0^2(n^2 - n_0^2)[\alpha u_j(z + \Delta z) - (1 - \alpha)u_j(z)]\Delta z \\ + \left[\alpha \frac{u_{j-1}(z + \Delta z) - 2u_j(z + \Delta z) + u_{j+1}(z + \Delta z)}{\Delta x^2} - (1 - \alpha) \frac{u_{j-1}(z) - 2u_j(z) + u_{j+1}(z)}{\Delta x^2} \right] \Delta z \quad (3.12)$$

Esta ecuación relaciona la amplitud del campo en $z + \Delta z$, es decir $u(z + \Delta z)$, con el campo en z , es decir $u(z)$. Reordenando los términos en la ecuación anterior, se obtiene:

$$a_j u_{j-1}(z + \Delta z) - b_j u_j(z + \Delta z) + c_j u_{j+1}(z + \Delta z) = r_j(z) \quad (3.13)$$

donde los coeficientes a_j , b_j , c_j y r_j se definen como:

$$a_j = -\alpha \frac{\Delta z}{\Delta x^2} \\ b_j = 2\alpha \frac{\Delta z}{\Delta x^2} - \alpha \Delta z [n_j^2(z + \Delta z) - n_0^2] k_0^2 + 2iK \\ c_j = -\alpha \frac{\Delta z}{\Delta x^2} \\ r_j = (1 - \alpha) \frac{\Delta z}{\Delta x^2} [u_{j-1}(z) + u_{j+1}(z)] + \\ \left\{ (1 - \alpha) \Delta z [n_j^2(z) - n_0^2] k_0^2 - 2(1 - \alpha) \frac{\Delta z}{\Delta x^2} + 2iK \right\} u_j(z) \quad (3.14)$$

La ecuación (3.13), junto con los coeficientes definidos en (3.14), forman un sistema tridiagonal de N ecuaciones ($j = 1, 2, \dots, N$), que puede ser resuelto de manera muy eficiente. El algoritmo utilizado para resolver este sistema tridiagonal es el conocido como método de Thomas [6].

En rigor, el esquema de Crank-Nicolson es incondicionalmente estable para $\alpha > 0.5$ si el índice de refracción es independiente de x y de z . Sin embargo, si el índice de refracción varía lentamente o si es uniforme con pequeñas discontinuidades, el método de Crank-Nicolson se puede aplicar a nivel local. En estas circunstancias, el análisis conduce a soluciones válidas, incluso para las situaciones más adversas.

Aparte de la estabilidad numérica, la mayor ventaja del método Crank-Nicolson proviene del hecho de que proporciona una mejor aproximación a la solución exacta del problema. Mientras que el método FFT-BPM permite una aproximación de primer orden en el paso de propagación $O(\Delta z + \Delta x^2)$, el método de Crank-Nicolson establece una aproximación de segundo orden en la propagación $O(\Delta z^2 + \Delta x^2)$. Por lo tanto, el método de diferencias finitas es un poderoso método numérico que permite el uso de pasos de propagación grande, con el consiguiente ahorro en el tiempo de cálculo.

Esta no es la única ventaja del método FD-BPM sobre el FFT-BPM: si la ventana de cálculo se reduce de tal forma que el campo óptico alcanza los límites computacionales, es necesario implementar algoritmos para evitar que estos campos se reflejen en las fronteras y se reincorporen a la ventana computacional, de lo contrario, la simulación de los dispositivos ópticos no será correcta. Este problema se puede resolver adecuadamente en el caso de FD-BPM, pero es complicado cuando se utiliza el método FFT-BPM. Otras ventajas adicionales del FD-BPM, son una mayor memoria y un tiempo de trabajo en el modelado estructuras complejas más pequeño [7,8].

Bibliografía

- [1] G. Lifante, “Integrated photonics. Fundamentals”, ed. John Wiley & Sons (2003)
- [2] M.D. Feit, J.A. Fleck, “Light propagation in graded-index optical fibers”, *Appl. Optics* **17**, 3990 (1978)
- [3] R. Scarmozzino, R.M. Osgood, “Comparison of finite-difference and Fourier-transform solutions of the parabolic wave equation with emphasis on integrated optics applications”, *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 724 (1991)
- [4] W.P. Huang, C.L. Xu, S.T. Chu, S.K. Chaudhuri, “The finite difference vector beam propagation method: analysis and assessment”, *J. Lightwave Technol.* **10**, 295 (1992)
- [5] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, “Numerical recipes in Fortran 77: the art of scientific computing”, capítulo 19, Cambridge University Press, New York (1996)
- [6] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, “Numerical recipes in Fortran 77: the art of scientific computing”, capítulo 2, Cambridge University Press, New York (1996)
- [7] G.R. Hadley, “Multistep method for wide-angle beam propagation”, *Opt. Lett.* **17**, 1743 (1992)
- [8] M.S. Al Salamed, M.R. Owais, “Full wave analysis of dielectric optical waveguides by vectorial finite elements and absorbing boundary condition”, *J. Opt. Com.* **20**, 74 (1999)

4 Técnicas experimentales

Una de las partes más importantes de cualquier trabajo experimental, es conocer de forma precisa la realización del experimento. Es por ello que se van a describir las características más importantes de los equipos de medida, muestras y técnicas utilizadas, a fin de mostrar una mayor comprensión de los resultados obtenidos que se presentarán en el capítulo 5. Se ha prestado una mayor importancia a la técnica SNOM (ver capítulo 1), dado que son los resultados obtenidos mediante la misma los que han dado lugar a la realización de este trabajo.

4.1 Preparación de muestras

Dado que el interés de este trabajo se centra en el estudio del guiado óptico que se produce en estructuras fotónicas, tanto en cristales con dominios ferroeléctricos, como en materiales modificados mediante radiación láser pulsada, la elección de los mismos se basó tanto en la facilidad de obtener en ellos las estructuras deseadas, como por su interés y utilidad para la industria y el desarrollo de dispositivos ópticos.

4.1-1 Muestras ferroeléctricas

La ferroelectricidad, descubierta por Valasek en 1921 mientras investigaba propiedades dieléctricas anómalas en la sal de Rochelle ($\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) [1], es una propiedad física que consiste en que el material denominado ferroeléctrico, presenta una polarización espontánea (P_s) en ausencia de campo eléctrico externo. Los cristales ferroeléctricos se encuadran como un subgrupo de los materiales piroeléctricos, los que a su vez están contenidos en el grupo de los cristales piezoeléctricos, cuyas propiedades son más generales y que se describen a continuación de manera muy breve.

Los cristales piezoeléctricos son aquellos que presentan polarización eléctrica cuando se les aplica una determinada presión, cuya magnitud es directamente proporcional a la presión aplicada. Cada componente de la polarización inducida P_i se puede escribir como:

$$P_i = d_{ijk} \sigma_{jk} \quad (4.1)$$

donde σ_{jk} representa el tensor de “*stress*” y d_{ijk} es el módulo piezoeléctrico. Los sensores de vibraciones, en los que las variaciones de presión producidas por las vibraciones dan lugar a un pulso de corriente proporcional a la fuerza ejercida, son un ejemplo de dispositivos basados en la piezoelectricidad.

Del mismo modo existe el efecto piezoeléctrico inverso, en el que como consecuencia de aplicar un campo eléctrico a un cristal piezoeléctrico, los iones de la estructura cristalina son desplazados por las fuerzas electroestáticas, dando lugar a una deformación mecánica que implica cambios en el espesor del material que puede ser determinado mediante la expresión:

$$\varepsilon_{jk} = d_{ijk} E_i \quad (4.2)$$

donde las componentes E_i denotan el campo eléctrico dentro del cristal y ε_{jk} el tensor de deformación.

La capacidad que presentan los materiales piezoeléctricos de convertir la energía mecánica en energía eléctrica y viceversa, los ha hecho indispensables para aplicaciones tan diversas como son los transductores acústicos usados en sistemas de sonar o en algunos dispositivos clínicos de ultrasonidos [2], diminutos motores de alta precisión destinados a aplicaciones médicas y tecnológicas como es el caso de los moduladores piezoeléctricos utilizados en la microscopía de fuerzas atómicas y SNOM [3], dispositivos para la obtención de la energía utilizando movimiento y las vibraciones ambientales [4], etc.

Existen ciertos cristales piezoeléctricos que presentan una polarización espontánea P_s , de estos, los que poseen dos o más estados de polarización espontánea, de modo que se puede pasar de uno a otro mediante la aplicación de un campo eléctrico externo, se les denomina cristales ferroeléctricos. La reorientación de estos estados de polarización no es completamente reversible y siguen el ciclo de histéresis descrito en la figura 4.1, donde se observa que el campo eléctrico aplicado para pasar de un estado de polarización a otro ha de ser mayor que el campo coercitivo E_c , definido como el campo eléctrico necesario para anular el campo eléctrico remanente, E_R .

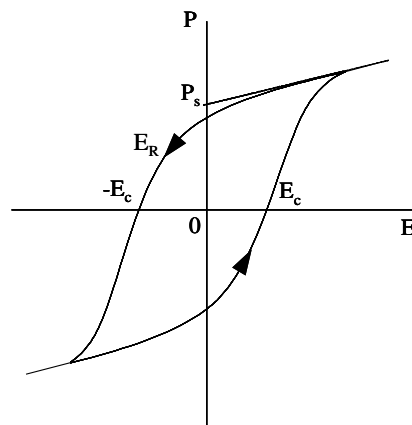


Figura 4.1 Ciclo de histéresis ferroeléctrico

Esta polarización espontánea disminuye a medida que se aumenta la temperatura del cristal y desaparece a partir de la temperatura de Curie (T_c) donde los cristales pasan a fase paraeléctrica, lo que generalmente está asociado con un cambio en la simetría de la red cristalina (siendo mayor la simetría en esta fase paraeléctrica).

Cuando un cristal ferroeléctrico es enfriado y sufre una transición desde la fase paraeléctrica a la fase ferroeléctrica en ausencia de campo eléctrico, al menos aparecen dos direcciones de polarización espontánea diferentes como se acaba de indicar. Para minimizar la energía que aparece como consecuencia de la diferente densidad de carga superficial presente en la cara del cristal hacia donde apunta la polarización con respecto a la cara opuesta, diferentes regiones del cristal se polarizan en cada una de las direcciones de polarización existentes, denominándose dominio ferroeléctrico a cada uno de estos volúmenes de polarización uniforme.

La polarización espontánea cambia rápidamente de sentido al pasar de un dominio a otro, conociéndose como frontera de dominio la región donde se produce este cambio (ver figura 4.2). A pesar de que el tamaño de estas fronteras ha sido estimado en unas pocas celdas unidad (\sim nanómetros) [5], estudios realizados por Gopalan et al. [6] han concluido que algunas propiedades ópticas y eléctricas pueden presentar variaciones que se extienden varias micras en la vecindad de las fronteras de dominio.

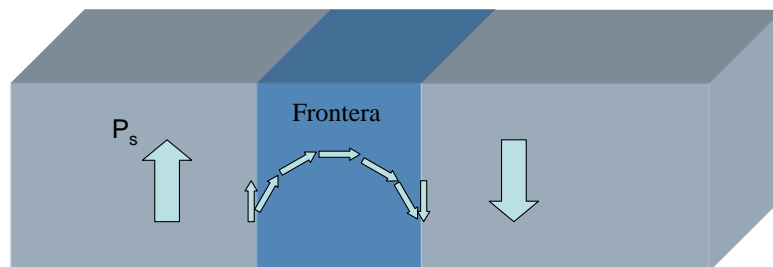


Figura 4.2 Transición de la polarización desde un dominio a su vecino, en el caso de dominios antiparalelos

4.1-1.1 Técnicas de fabricación de los dominios ferroeléctricos

Como se mencionó anteriormente, uno de los intereses de este trabajo es obtener muestras ferroeléctricas periódicamente polarizadas. Objetivo que no es trivial, ya que la afirmación anterior de que existe el mismo volumen de cristal polarizado en cada una de las direcciones de polarización espontánea de la muestra, no implica que se obtenga un patrón de dominios periódicos, obteniéndose por lo general una distribución aleatoria de los mismos. Para este fin se utilizaron dos técnicas diferentes:

i) **Crecimiento Czochralski fuera de eje.** No hace mucho quedó demostrado que se podían obtener cristales ferroeléctricos periódicamente polarizados directamente del proceso de crecimiento [7]. Esto se consigue mediante el denominado método Czochralski fuera de eje, que es igual a la técnica convencional (ver Fig. 4.3), con la única diferencia de que el cristal no está centrado en el horno, existiendo un desplazamiento entre el eje de rotación y el eje de simetría del campo de temperaturas del horno. Esta asimetría provoca que exista un gradiente de temperaturas fuera del eje central debido a las corrientes de convección del fundido, dando lugar a la aparición de carga espacial, campos eléctricos debidos al efecto termoeléctrico y a fluctuaciones aleatorias de temperatura que acaban produciendo la polarización del material.



Figura 4.3 Fotografía del sistema de crecimiento Czochralski utilizado en el laboratorio de óptica Integrada de la Universidad Autónoma de Madrid. El crisol contiene el producto de partida, sobre el que rota un germen cristalino del material que se desea crecer, el cual se eleva al tiempo que va creciendo el cristal

Mediante esta técnica resulta muy complicado experimentalmente la obtención de estructuras perfectamente periódicas de dominios ferroeléctricos, debido a que es necesario controlar una gran cantidad de variables. Algunas de éstas son: las concentraciones de partida, las velocidades de tiro y de rotación, el tiempo de enfriamiento, la temperatura tanto del fundido como del germen a lo largo de todo el tiempo de crecimiento, la concentración de impurezas en los cristales dopados,... Por este motivo los patrones de dominios creados mediante esta técnica no siempre son periódicos en su totalidad y la muestra puede presentar regiones con diferentes periodicidades. La eficiencia de este proceso depende en gran medida de la

concentración de impurezas existentes en el fundido, motivo por el cual se han utilizado materiales impurificados.

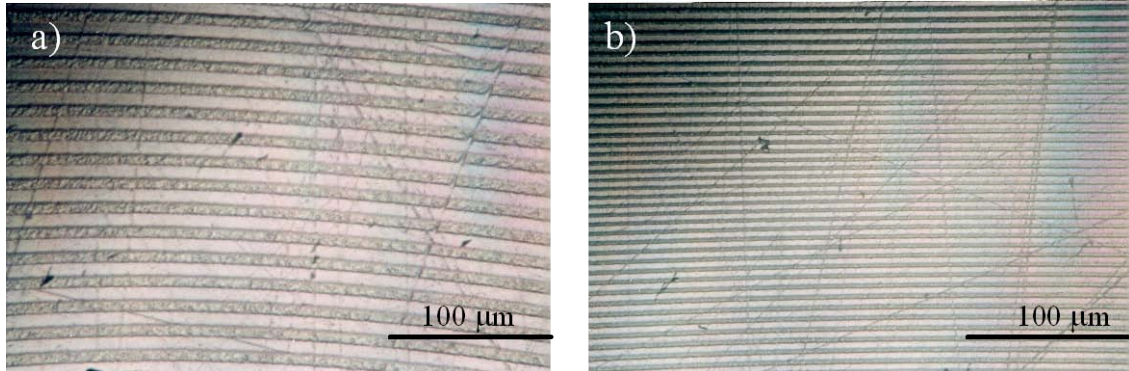


Figura 4.4 Fotografías tomadas con un microscopio óptico correspondientes a una muestra de $\text{LiNbO}_3\text{:Er:Yb}$. a) zona superior del cristal donde se aprecian dominios con una periodicidad de $15,5 \mu\text{m}$; b) zona inferior del cristal con dominios de $\sim 6 \mu\text{m}$

Este hecho se observa claramente en las muestras estudiadas de LiNbO_3 (LN) y $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ (BNN) que fueron fabricadas mediante esta técnica. Tras someter a los cristales a un ataque químico diferencial por inmersión en HF:HNO_3 , durante 2 horas, se pudo distinguir que mientras en el caso del BNN la periodicidad era de $5 \pm 1 \mu\text{m}$ según la región del cristal estudiada, la muestra de LN era claramente aperiódica, presentando diferentes regiones cuyas periodicidades variaban entre las 5 y las $60 \mu\text{m}$. En la figura 4.4 se presentan dos fotografías de la muestra de LN tomadas con un microscopio óptico en dos zonas diferentes del cristal, donde se puede observar claramente la diferente periodicidad de la muestra. Para este caso en concreto *Cantelar et al* [8] consideraron, que la principal variable que afectó a esta aperiódicidad fue la variación en la concentración total de impurezas existentes en el fundido a lo largo de todo el tiempo de crecimiento.

ii) Fabricación de estructuras periódicas mediante la aplicación de campos eléctricos. Debido a las dificultades experimentales para obtener dominios ferroeléctricos periódicos durante el proceso de crecimiento, la técnica más comúnmente empleada para la fabricación de muestras ferroeléctricas periódicamente polarizadas es mediante la aplicación controlada de un campo eléctrico externo, de modo que se modifique el estado de polarización únicamente en determinadas regiones del cristal previamente escogidas.

Para llevar a cabo esta técnica es necesario tener una muestra monodominio, para lo cual es necesario aplicar un campo eléctrico constante y mayor al E_c de la muestra durante el proceso de enfriamiento del cristal, de modo que se imponga una única dirección de polarización, la cual quedará determinada por la dirección del campo eléctrico aplicado. Una vez conseguido esto, la muestra es cortada y pulida y se crea la estructura de dominios deseada mediante electrodos, invirtiendo la dirección de polarización mediante la aplicación de un campo eléctrico externo mayor a E_c , únicamente en las zonas del cristal donde se han depositado dichos electrodos [9]. Como puede verse en el esquema de la figura 4.5a, una de las caras del cristal queda completamente cubierta por un electrodo metálico, mientras que en la cara opuesta es donde se deposita la estructura metálica que se desea obtener, retirando los electrodos de la muestra una vez obtenida la inversión de dominios. Mediante esta técnica se fabricó, en una muestra de tantalato de litio (LiTaO_3 , LT), la estructura que se presenta en las figuras 4.5b y c.

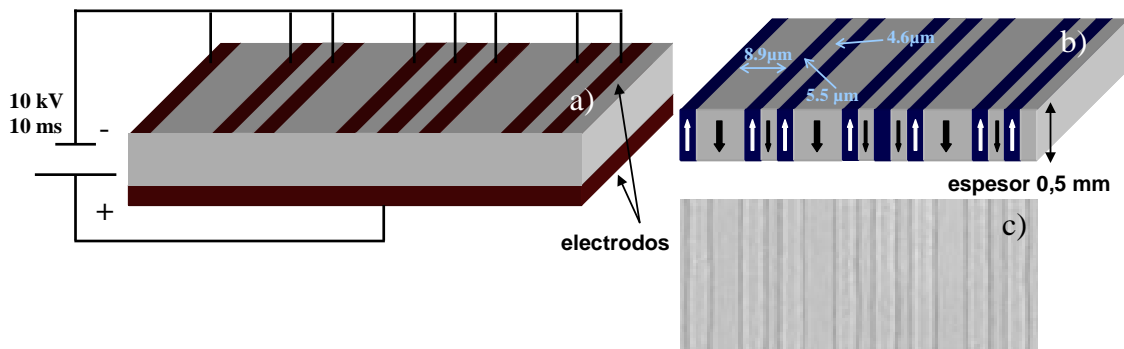


Figura 4.5 a) Esquema de la técnica de aplicación de campo eléctrico, donde el color marrón representa los electrodos; b) Representación esquemática de la estructura grabada en LT, donde los colores azul y gris hacen referencia a cada uno de los dos tipos de dominios presentes en la muestra; c) Fotografía de la estructura después de realizar a la muestra un ataque químico (obtenida de la referencia [10])

4.1-1.2 Técnicas más relevantes de detección de los dominios ferroeléctricos

Para comprender mejor la ferroelectricidad y controlar la creación de estructuras de dominios ferroeléctricos, resulta esencial la observación de los mismos [11], existiendo una gran variedad de técnicas para tal efecto dependiendo de si se desea ver el tamaño de los dominios, tener resolución lateral, etc. A continuación se describen

brevemente los métodos más importantes para la detección los dominios ferroeléctricos y por tanto de las estructuras periódicas antes descritas:

i) Observación de los dominios ferroeléctricos mediante la modificación de la superficie. Como consecuencia de la ferroelectricidad las superficies del cristal perpendiculares al vector de polarización quedan cargadas, pudiéndose detectar interacciones entre el campo electrostático en la superficie del cristal y partículas cargadas o polares. De entre las diferentes técnicas que se engloban en este grupo destaca el ataque químico diferencial, que es la técnica más común para la observación de dominios ferroeléctricos a pesar de ser destructiva.

El ataque químico diferencial es una técnica que siempre revela la estructura de dominios existente en la muestra, debido a la diferente velocidad de ataque que presentan las terminaciones de los dominios positivos con respecto a los negativos al ser atacados por un ácido. Para observar los resultados de dicho ataque se pueden utilizar a posteriori o un microscopio óptico o cualquier técnica que permita la detección de variaciones en la topografía de la superficie, como puede ser por ejemplo un microscopio electrónico de barrido (SEM) o un microscopio de fuerzas atómicas (AFM). En el caso de las muestras estudiadas (LN, LT, BNN), el coeficiente de ataque es mayor para los dominios negativos que para los positivos (existen cristales para los cuales ocurre al revés, como por ejemplo en el niobato de estroncio y bario, SBN), de ahí que en las imágenes ópticas parezca que los dominios positivos no han sido atacados con respecto a los dominios negativos.

ii) Detección de los dominios ferroeléctricos mediante métodos ópticos. Los métodos ópticos tienen la gran ventaja de no ser destructivos y de poder observar en tiempo real el proceso de formación de los dominios. Además algunos de estos montajes de detección permiten realizar análisis de la configuración de los dominios en el volumen del cristal. La principal desventaja de estos métodos es que la resolución viene determinada por el límite de difracción lateral, que es del orden de 1 μm para las técnicas convencionales. Actualmente para solucionar este problema se emplean técnicas como el SNOM (el capítulo 1 de esta memoria está dedicado íntegramente a la descripción detallada de la técnica SNOM), que permiten obtener resoluciones laterales del orden de las decenas de nanómetro. La propiedad física que más comúnmente sirve

para la observación de los dominios ferroeléctricos es el cambio en el índice de refracción, que en el caso de los dominios antiparalelos (180°) estudiados, es la diferencia del índice de refracción entre los dominios $+c$ (siendo c el eje óptico) y los dominios $-c$ [12].

4.1-1.3 Descripción de las muestras utilizadas

Entre los diferentes materiales ferroeléctricos se escogieron el niobato de litio (LiNbO_3 , LN), el tantalato de litio (LiTaO_3 , LT) y el niobato de bario y sodio ($\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$, BNN). Los tres sistemas son de gran importancia dadas sus excelentes propiedades ópticas no lineales y han sido ampliamente estudiados como conversores de frecuencia [13-15], dispositivos de superalmacenamiento de datos [16] o como cristales fotónicos no lineales [17] entre otras aplicaciones. La posibilidad de crear distribuciones periódicas de micro dominios ferroeléctricos ha aumentado aún más si cabe el interés en estos cristales, ya que esto proporciona la posibilidad de fabricar superredes ópticas, de gran interés para el desarrollo de redes de difracción electroópticas, conversores de frecuencia no lineales o moduladores electroópticos (ver por ejemplo [18]).

El niobato de litio

Una de las características más destacables del LN es que es un material ferroeléctrico a temperatura ambiente, ya que su temperatura de Curie es del orden de los $1050\text{-}1200^\circ\text{C}$ dependiendo de la estequiometría del cristal (relación $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$) [19]. Este hecho junto con la facilidad de crear en él patrones de dominios ferroeléctricos, tanto durante el proceso de crecimiento, como mediante la aplicación de campo eléctrico, hacen del LN uno de los candidatos más idóneos para este trabajo.

Para la realización de esta investigación se utilizó un cristal de LN de dimensiones $1 \times 1 \times 0.1 \text{ cm}^3$ impurificado con iones erbio (Er^{3+}) e iterbio (Yb^{3+}), en el que se creó una estructura periódica de dominios antiparalelos mediante la técnica Czochralski fuera de eje. La concentración inicial de iones en el fundido fue de Er^{3+} (0.5 mol%) e Yb^{3+} (0.5 mol%), donde las variaciones de dichas concentraciones en el fundido durante el crecimiento del cristal, jugaron un papel crítico en la formación de dominios principalmente en relación con su periodicidad. El crecimiento se realizó a lo

largo del eje x en una atmósfera de aire con control automático del diámetro. Para comprobar la existencia de dominios, la muestra fue sometida a un ataque químico diferencial por inmersión en HF:HNO_3 en la proporción 1:2 durante 150 minutos a temperatura ambiente, tras el cual se reveló una topografía de regiones no atacadas por el ácido (dominios ferroeléctricos positivos) y regiones que sí lo estaban (dominios ferroeléctricos negativos), que como se mencionó anteriormente presentaban diferentes periodicidades dependiendo de la región de la muestra observada. La caracterización de la estructura de dominios se realizó mediante microscopía de fuerzas atómicas (AFM), encontrándose que las periodicidades variaban a lo largo de la muestra desde las 5 μm hasta las 60 μm . A la hora de caracterizar las estructuras mediante la técnica SNOM, se tuvo especial cuidado en pulir la muestra hasta grado óptico (rugosidades de la superficie del orden de $\lambda/4$), a fin de eliminar cualquier posible efecto topográfico en la señal óptica.

Otra de las propiedades más importantes del LN es que es un material fotorrefractivo, lo que permite su aplicación en memorias ópticas, las cuales pueden almacenar gran cantidad de información en forma de hologramas, o en dispositivos basados en la mezcla de ondas [20]. En este sentido el estudio de este material se complementa con la investigación del contraste óptico en redes holográficas grabadas en una muestra de niobato de litio impurificado con iones hierro ($\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$) mediante la interferencia de haces coherentes.

El niobato de bario y sodio

El BNN es también un material ferroeléctrico a temperatura ambiente (la transición a la fase paraeléctrica se produce a 560 °C [21]), que posee unas excelentes propiedades ópticas no lineales y electroópticas. Además los cristales de BNN se suelen utilizar en aplicaciones de doblado de frecuencias dada su alta eficiencia en procesos de conversión y su resistencia al daño óptico. Como ejemplo, el BNN se utiliza para obtener una eficiencia cercana al 100% en la generación de segundo armónico utilizando láseres de Nd:YAG (1060 nm \rightarrow 532 nm) [22].

Al igual que en el caso del LN, el cristal de BNN de dimensiones $5 \times 4 \times 1 \text{ mm}^3$ fue crecido mediante la técnica Czochralski fuera de eje. En este caso la muestra de BNN estaba impurificada con iones neodimio (Nd^{3+}), donde la concentración de iones en el fundido fue del orden del 1%. El crecimiento (llevado a cabo en el Instituto de Cristalografía de la Academia de Ciencias Rusa, Moscú), se realizó a lo largo del eje z , a fin de obtener una distribución periódica de dominios en el plano x - y . Al igual que con la muestra de LN la estructura de dominios se reveló mediante ataque químico diferencial, caracterizándose posteriormente mediante microscopía óptica de transmisión, donde en esta ocasión los dominios encontrados presentaban una periodicidad de $5 \text{ }\mu\text{m}$ con una variación de $\pm 1 \text{ }\mu\text{m}$ según la región del cristal observada [23]. La caracterización óptica tras el pulido de la muestra, al igual que a lo largo de todo el trabajo, se realizó mediante la técnica SNOM.

El tantalato de litio

Finalmente se estudió la distribución de dominios creada en un cristal congruente de LT con corte z (crecido en el Laboratorio de Microestructuras de Estado Sólido de la universidad de Nanking, China). El LT presenta propiedades similares a las del LN, que le convierten en un candidato igualmente interesante para este trabajo, aunque presenta una temperatura de Curie algo menor, del orden de los $650 \text{ }^\circ\text{C}$. En este caso a diferencia de las otras dos muestras, las estructuras fueron creadas mediante la aplicación de un campo eléctrico externo, por lo que se pudo fabricar una estructura algo diferente como se apreciaba en la figura 4.5, la cual estaba optimizada para la generación de tercer armónico [24]. Al igual que en los casos anteriores, las estructuras se caracterizaron mediante AFM, antes de pasar al estudio óptico de la misma mediante la técnica SNOM.

4.1- 2 Muestras dañadas por láser

El propósito en este caso era modificar las muestras para obtener estructuras fotónicas utilizando pulsos láseres de femtosegundos. Estas modificaciones se realizaron mediante la técnica denominada “escritura directa con láser” (Direct Laser

Writing, DLW), que consiste en la transferencia de energía de un haz láser a la muestra de manera precisa, a fin de poder controlar los cambios estructurales que se producen en el volumen focal. En una primera aproximación se pueden distinguir dos situaciones:

i) Cuando la densidad de energía es mayor que el límite de ablación de la muestra, ésta es absorbida provocando la ruptura de los enlaces de la red y convirtiendo la región del volumen focal del láser en un plasma de alta densidad. Si el proceso es en superficie, la generación del plasma puede dar lugar a la ablación del material.

ii) La otra situación es cuando la densidad de energía es menor, y aunque se encuentra por debajo del umbral de daño, es suficiente para producir cambios en las propiedades ópticas y estructurales del material.

Independientemente de que el volumen focal esté en la superficie o en el interior del cristal, la expansión causada como consecuencia de la creación del plasma da lugar a fuertes presiones en los alrededores de la zona dañada, que implican la aparición de campos de presión que producen cambios en el índice de refracción [25]. Las regiones ionizadas suelen relajarse y vuelen a solidificarse en fase amorfa, lo que facilita la detección de estas modificaciones mediante la técnica SNOM, ya que la constante dieléctrica de la fase cristalina de la muestra (directamente relacionada con el índice de refracción macroscópico del cristal por la ecuación $n = \sqrt{\epsilon\mu}$, donde n es el índice de refracción, ϵ la constante dieléctrica y μ la permeabilidad magnética), es aproximadamente 70-200% mayor que en la fase amorfa, la cual presenta por tanto una reducción considerable en el índice de refracción [26].

A primera vista la técnica DLW únicamente requiere la elección de una lente adecuada y mover el punto focal a través de la muestra, a fin de conseguir “dibujar” el diseño deseado. Sin embargo variaciones en la potencia del láser o en la apertura numérica de la óptica utilizada juegan papeles muy importantes en el resultado final, siendo los procesos más críticos los enumerados a continuación:

i) Autoenfoco. Si el haz láser es muy intenso, puede modificar por sí mismo su propagación, ya que el índice de refracción de un material transparente como el Nd:YAG, depende de esta intensidad de la forma [27]:

$$n = n_0 + n_2 I \quad (4.3)$$

donde n_0 es el índice de refracción lineal y n_2 es el índice de refracción no lineal. Esto implica que no sea sencillo ni trivial el conocer como será la propagación del haz láser.

ii) Aberración esférica. Es un defecto por el cual los rayos que inciden en una lente paralelamente al eje óptico, pero a una cierta distancia de éste, son focalizados en un punto diferente a los rayos que inciden próximos al eje óptico. Este fenómeno se produce en la intercara entre el aire y el vidrio y da lugar a una elongación del volumen focal. La aberración esférica depende de la apertura numérica (NA) de las lentes utilizadas, siendo más importante su efecto cuanto mayor es la NA [28].

Estas consideraciones implican que hay que llegar a un compromiso en los valores de la NA (mayor NA implica mejor resolución lateral como vimos en el capítulo 2, pero también mayor aberración esférica) y potencia del láser utilizadas, haciendo necesario un estudio detallado de los valores óptimos para la aplicación de la técnica DLW [29].

4.1-2.1 Fabricación de las guías de onda

La reducción del índice de refracción en la región modificada implica que el índice de refracción en los alrededores de la misma sea mayor, pudiéndose utilizar este hecho para la fabricación de estructuras que guíen la luz (guías de onda ópticas; ver capítulo 2). La primera vez que se consiguió fabricar una guía de onda mediante la técnica DLW fue en un vidrio a mediados de los años noventa [30], dando comienzo a una intensa investigación a fin de optimizar los procesos de fabricación. Es por eso que a pesar del interés despertado por la fabricación de guías de onda mediante la técnica DLW, aún hoy es poco lo que se sabe sobre los mecanismos físicos responsables, en cada uno de los casos, de las variaciones de índice de refracción observadas. Así los

cambios observados en el índice de refracción pueden ser el resultado de diferentes procesos como: generación de una alta densidad de defectos, tensión en la red cristalina, cambios locales de la estequiometría, reorganización iónica o amorfización local entre otros [31].

En el caso del trabajo que aquí se presenta, las estructuras fabricadas fueron guías de onda acanaladas, las cuales se realizaron mediante la técnica DLW con un montaje similar al presentado en la figura 4.6, donde se puede ver cómo se han obtenido las regiones modificadas focalizando un láser en el interior del cristal y barriendo a lo largo de todo el ancho del mismo (aunque no se presente en la figura 4.6 las regiones modificadas iban de un lado al otro del cristal). Al producir una disminución del índice en dos canales a lo largo de toda la muestra, lo que se obtuvo fue una guía acanalada situada entre las dos estructuras como se aprecia en el esquema de la figura 4.6 b.

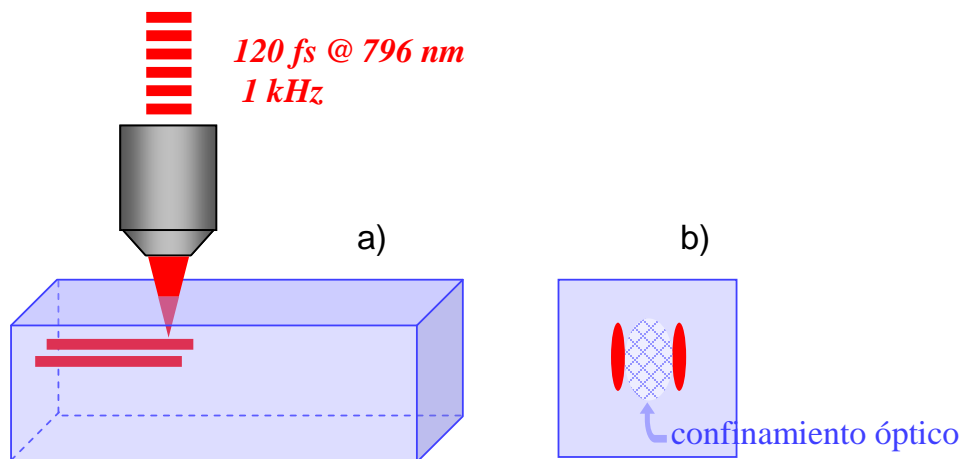


Figura 4.6 a) Representación esquemática de la fabricación de una guía de onda acanalada en el interior de un cristal mediante la técnica DLW. b) Vista del lateral del cristal, que muestra la región donde se produce el confinamiento de la luz

Para la fabricación de las estructuras que se realizaron en el laboratorio del grupo de óptica del departamento de Física Aplicada de la universidad de Salamanca, se utilizó un láser de titanio zafiro (spitfire, Spectra Physics), con el cual se emitieron pulsos de 120 fs linealmente polarizados, a una longitud de onda de 796 nm y a 1 KHz de repetición. El haz del láser se focalizó mediante un objetivo de microscopio 10x, con apertura numérica $NA = 0.3$, una distancia aproximada de 500 μm por debajo de la superficie. Las dos regiones modificadas, separadas una distancia de 12 ó 20 μm , se fabricaron a una velocidad de 50 $\mu\text{m/s}$, utilizando para ello un sistema motorizado xyz.

con resolución espacial de 0.2 micras. La fluencia del pulso láser fue de 20 J/s correspondiente a un pulso de 0.8 μ J. La potencia del pulso láser se estimó en 5.5 MW dependiendo del valor exacto de la duración del pulso después de atravesar el objetivo del microscopio, i.e. $P \approx 6.2 P_{cr}$ con P_{cr} (potencia umbral del YAG para el fenómeno de autoenfoco) dado por la expresión:

$$P_{cr} = \lambda^2 / 2\pi n_0 n_2 \quad (4.4)$$

siendo $n_0 = 1.83$ y $n_2 = 6 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ los índices de refracción lineal y no lineal del YAG [32].

4.1-2.2 Descripción de las muestras utilizadas

En este caso se escogió el óxido de itrio y aluminio impurificado con neodimio ($\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, Nd:YAG), dado el renovado interés suscitado por este material al conseguirse fabricar en él estructuras fotónicas tridimensionales o por ejemplo láseres en guías de onda [33, 34]. A pesar de que cada vez son más numerosos los trabajos en este campo, los mecanismos de cómo la luz láser induce un cambio en el índice de refracción están aún hoy poco explorados, siendo el conocimiento de la naturaleza de estas modificaciones necesario para tener control sobre el comportamiento óptico de las estructuras fotónicas creadas. En este sentido la utilización de nuevas técnicas ópticas que permiten una mayor resolución (como el SNOM) pueden ser de gran interés para el estudio de dichas modificaciones.

Para la realización del estudio se utilizaron dos muestras de Nd:YAG con diferente concentración de iones Nd^{3+} . Una primera muestra consistente en un cristal de Nd:YAG con 0.5 % de iones Nd^{3+} , que se utilizó para estudiar los mecanismos responsables de la variación del índice de refracción, y una segunda muestra de Nd:YAG cerámico, de dimensiones $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$ suministrada por la empresa Baikowski Ltd. (Japón), en la que la concentración nominal de iones Nd^{3+} era del 2 %. En esta segunda muestra se fabricaron las guías de onda, cuyo estudio se presentará en el capítulo 6.

4.2 Descripción del microscopio óptico de campo cercano (SNOM)

Una vez introducidos los principios teóricos que rigen el funcionamiento de un SNOM en el capítulo 1, se mostrará de manera detallada el funcionamiento concreto del equipo de medida utilizado para el desarrollo del trabajo.

4.2-1 Tipos de SNOM

En la actualidad los equipos SNOM comerciales tienen una resolución real de unos 50-80 nm, aunque potencialmente se podrían alcanzar hasta 10-30 nm de resolución como se mencionó anteriormente [35]. Esto es un factor 5 ó 10 veces mejor que la resolución obtenida mediante un microscopio confocal estándar con 1.4 de apertura numérica. Esta mejora, lejos de ser insignificante, representa un enorme progreso en vista de la relevancia e importancia que tiene para el desarrollo de la nanociencia, el régimen de tamaños por debajo de los 100 nm.

Comercialmente se pueden adquirir tres tipos diferentes de SNOM, que son los denominados SNOM con abertura, el SNOM sin abertura (α -SNOM) y el microscopio óptico de efecto túnel (*scanning tunneling optical microscope* STOM) [36]. Este capítulo se centrará en el SNOM denominado con abertura, ya que es en la actualidad el SNOM comercial más utilizado y el equipo con el que se realizaron los experimentos que se describen en este trabajo. Es por ello por lo que sobre los otros dos tipos de SNOM se hará sólo una breve descripción:

i) α -SNOM (Fig. 4.7). Su interés se originó en el sorprendente aumento de la respuesta óptica observada en muestras metálicas rugosas, como consecuencia de la corrugación nanométrica de su superficie [37, 38]. Este mismo efecto puede tener lugar en el ápice de una punta de AFM (*Atomic Force Microscope*, microscopio de fuerzas atómicas), el que se puede llegar a producir un fuerte aumento de la señal del campo cercano. El efecto que se produce en el extremo de la punta metálica al iluminarla con un láser (λ del láser mucho mayor que el diámetro de la punta) es similar al que se obtiene en las antenas ópticas, de modo que si el campo EM generado es lo

suficientemente elevado, el sistema de AFM puede utilizarse como instrumento para obtener imágenes del campo cercano de la superficie de las muestras (rugosas o no) con la resolución lateral característica de estos equipo, que es típicamente del orden del nanómetro [39, 40].

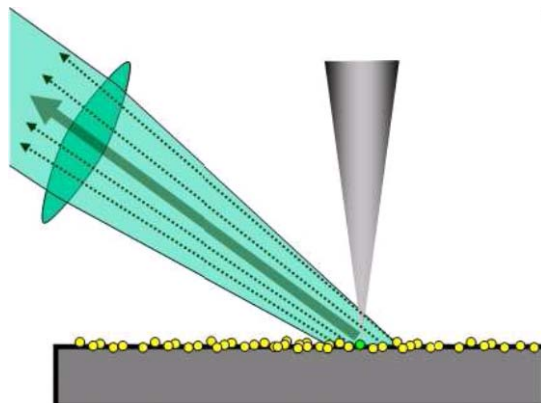


Figura 4.7 Al iluminar con un haz láser se obtiene una amplificación del campo cercano de la partícula con la que interacciona la punta (en verde en la figura)

ii) STOM (Fig. 4.8). En este caso el haz láser utilizado para iluminar la muestra sufre reflexión total interna en el sistema utilizado a modo de porta muestras (típicamente un prisma), de modo que la muestra únicamente es iluminada por las ondas evanescentes superficiales resultantes de dicha reflexión total interna (esto implica como es obvio, que la muestra sea una lámina delgada, o que directamente sea el prisma) [41]. De este modo al penetrar la punta de fibra óptica dentro del dominio de las ondas evanescentes (el decaimiento es típicamente 100 nm), una pequeña cantidad, proporcional a la excitación local, se convierte en modo guiado dentro de la fibra y es conducido hasta un fotodetector. Como veremos más adelante esto es una particularidad del caso más general del modo de colección en el SNOM con abertura.

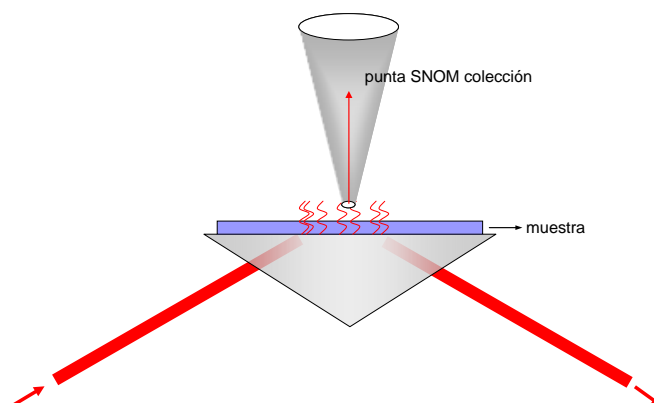


Figura 4.8 Esquema de funcionamiento de un STOM

Este modo de funcionamiento tiene la ventaja frente al SNOM convencional, de que no es necesario tener una punta metalizada (ver apartado 3 del capítulo 1) por lo que la perturbación de la distribución de campo es menor. Mediante esta configuración de medida se han llegado a tener resoluciones por debajo de los 100 nm [42].

SNOM con abertura

En el caso del SNOM con abertura (SNOM a partir de ahora para simplificar la redacción del texto) se pueden distinguir dos modos de trabajo distintos:

i) Modo de iluminación. En este caso la luz de un láser es acoplada a una fibra óptica cuyo extremo final ha sido afilado hasta conseguir diámetros de unos 50-100 nm, que se utiliza para iluminar la muestra en campo cercano. Se distinguen dos formas diferentes de trabajar, que se denominan modos de reflexión y transmisión. Al trabajar en reflexión, la superficie de la muestra es iluminada a través de la punta de la fibra y la luz retrodispersada (*backscattering*) por la superficie es colectada a través de un objetivo de microscopio de larga distancia de trabajo y posteriormente focalizada en un detector. En el caso de trabajar en transmisión, la superficie de la muestra es iluminada al igual que antes a través de la fibra, siendo ahora la luz transmitida a través de la muestra la que se recoge y se focaliza en el detector. La representación esquemática de los modos de funcionamiento del SNOM mencionados anteriormente se presenta en la figura 4.9.

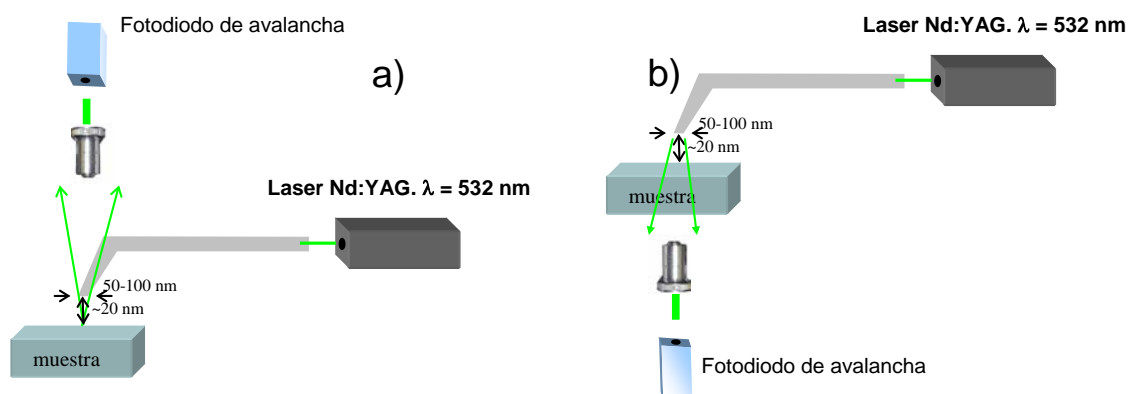


Figura 4.9 Configuración SNOM en el modo reflexión a) y en el modo transmisión b)

ii) Modo de colección. En este caso a diferencia del anterior, la muestra es iluminada por un haz láser (campo lejano), siendo la luz recogida en campo cercano por la punta afilada de una fibra óptica (ver figura 4.10a). Una vez colectada la luz por la fibra óptica, ésta es guiada hasta un detector. Los tamaños de las puntas utilizadas en este caso han de ser algo mayores a las usadas en el modo de iluminación (típicamente 100-300 nm) dada la menor eficiencia de colección de luz por la abertura de la fibra óptica. De manera alternativa se pueden realizar medidas de colección iluminando y recogiendo la luz retrodispersada por la muestra mediante la misma fibra (figura 4.10b), siendo ésta la única configuración en que se realiza la excitación y la detección en campo cercano. Para poder llevar a cabo medidas en esta configuración especial es necesario disponer de fibras que posean un divisor de haz en su interior, de modo que la luz colectada llegue hasta el detector y no vuelva a la fuente láser.

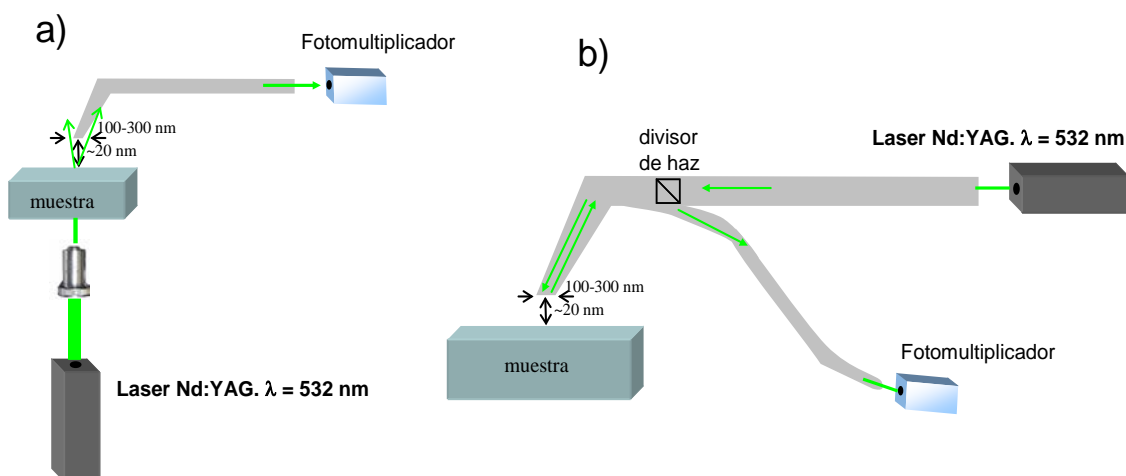


Figura 4.10 a) Configuración SNOM en el modo colección. b) Configuración para excitar y detectar en campo cercano

Aunque en esta configuración la eficiencia de detección es menor que en las configuraciones mostradas anteriormente, presenta la gran ventaja de que la excitación con campos evanescentes no es obligatoria y cualquier campo, como es el caso de un haz láser focalizado, puede usarse para la iluminación de la muestra [43].

4.2-2 Equivalencia entre transmisión y colección

Aunque la configuración de colección se ha utilizado en numerosos experimentos, hoy en día es uno de los modos de medida menos utilizados y se limita a aplicaciones específicas, como pueden ser medir los campos en el foco o en el plano de salida de un láser [44] o en la caracterización de cristales fotónicos [45]. Esto es debido a que: i) La punta tiene una influencia muy grande en el registro de la señal del campo cercano esperado; y ii) la eficiencia de colección es pequeña y por tanto se necesitan potencias de iluminación elevadas para obtener una señal suficiente, pudiendo producir daños en aquellos materiales fotosensibles. A pesar de ello el modo de colección ha sido de gran utilidad para el estudio del efecto de guía de onda en las diferentes estructuras [ver por ejemplo la referencia 46].

Otra cuestión por la que el modo de colección cada vez es menos utilizado es por la equivalencia existente entre los modos de colección y transmisión [47]. Así, para un modo de colección existe su equivalente modo de transmisión y viceversa, lo cual se establece por el teorema de reciprocidad de campos electromagnéticos. Sin embargo esta afirmación no es tan obvia, ni trivial, por las siguientes razones: i) el concepto de reciprocidad es mucho más sutil que simplemente revertir las direcciones de los caminos ópticos, necesitando emplear sistemas equivalentes; y ii) el teorema de reciprocidad derivado de las ecuaciones de Maxwell está referido a campos y no a intensidades, por lo que dado que los detectores ópticos miden intensidades el teorema de reciprocidad no puede ser empleado directamente.

A fin de conocer la condición necesaria para que dos sistemas sean equivalentes, se supondrá que $\mathbf{E}(\mathbf{p}_1; \mathbf{r}_0)$ representa el campo eléctrico en el detector \mathbf{p}_1 en cada instante debido a una fuente radiante \mathbf{r}_0 de amplitud \mathbf{A}_0 (en esta situación \mathbf{r}_0 es una fuente puntual, ya que representa la punta de SNOM en el modo de transmisión). De manera análoga $\mathbf{E}(\mathbf{r}_0; \mathbf{p}_1)$ denota el campo en \mathbf{r}_0 debido a una fuente radiante \mathbf{p}_1 de amplitud \mathbf{A}_1 (de igual manera en este caso \mathbf{r}_0 es un detector puntual, ya que representa la punta de SNOM en el modo de colección). Si asumimos que el medio no es ópticamente activo, el teorema de reciprocidad de campos electromagnéticos establece que:

$$A_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}_0; \mathbf{p}_1) = A_1 \mathbf{E}(\mathbf{p}_1; \mathbf{r}_0) \quad (4.5)$$

Para expresar los campos en función de las intensidades se calculan los módulos de las cantidades anteriores resultando:

$$\begin{aligned} \langle |\mathbf{E}(\mathbf{r}_0; \mathbf{p}_1)|^2 \rangle &= \mathbf{I}(\mathbf{r}_0; \mathbf{p}_1) ; \langle |A_1|^2 \rangle = \alpha_1 \\ \langle |\mathbf{E}(\mathbf{p}_1; \mathbf{r}_0)|^2 \rangle &= \mathbf{I}(\mathbf{p}_1; \mathbf{r}_0) ; \langle |A_0|^2 \rangle = \alpha_0 \end{aligned} \quad (4.6)$$

de modo que la expresión 4.5 se puede expresar como:

$$\alpha_0 \mathbf{I}(\mathbf{r}_0; \mathbf{p}_1) = \alpha_1 \mathbf{I}(\mathbf{p}_1; \mathbf{r}_0) \quad (4.7)$$

Si ahora se supone que la señal registrada por cada uno de los detectores es proporcional a la intensidad emitida por la fuente correspondiente, se puede escribir:

$$\begin{aligned} S_1 &= \delta_1 \mathbf{I}(\mathbf{p}_1; \mathbf{r}_0) \\ S_0 &= \delta_0 \mathbf{I}(\mathbf{r}_0; \mathbf{p}_1) \end{aligned} \quad (4.8)$$

donde S_1 es la señal detectada por el detector \mathbf{p}_1 y S_0 es la señal detectada cuando el detector está en \mathbf{r}_0 , siendo δ_0 y δ_1 el factor de conversión entre la intensidad incidente y la detectada. Si ambos sistemas son equivalentes esto implica que $S_1 = S_0$. A partir de las ecuaciones 4.7 y 4.8 se establece que la relación que se debe cumplir para que los sistemas de colección y transmisión sean equivalentes es:

$$\frac{\delta_1}{\alpha_1} = \frac{\delta_0}{\alpha_0} \quad (4.9)$$

En resumen no existen diferencias fundamentales entre los modos de transmisión y colección del SNOM, habiendo sólo un factor de proporcionalidad. Por tanto siempre es posible diseñar un sistema de SNOM en colección equivalente a un sistema SNOM en transmisión y viceversa. La principal consecuencia de esto es que salvo para casos específicos como los mencionados al comienzo de la sección, se utilice

el modo de transmisión para minimizar la influencia de la punta en la detección de la señal.

4.2-3 Características del equipo utilizado

El equipo SNOM utilizado para la realización de este proyecto, un MultiView 2000TM de la empresa Nanonics Imaging Ltd. (figura 4.11), consiste básicamente en un microscopio confocal (de la casa Olympus) en el que se ha incluido en el plano focal un cabezal de AFM/SNOM, que permite la realización de medidas en los tres modos de trabajo que se acaban de describir (reflexión, transmisión y colección).



Figura 4.11 a) Fotografía del SNOM Nanonics Imaging Ltd. modelo MultiView 2000TM utilizado en este trabajo

La resolución de las imágenes depende por tanto del tipo de medidas, así si se utiliza el microscopio óptico convencional la resolución vendrá dada por la expresión 1.3. Por ejemplo para una $\lambda = 500 \text{ nm}$ y teniendo en cuenta que se dispone de dos objetivos de aperturas numéricas $NA = 0.25$ (objetivo 10x) y $NA = 0.45$ (objetivo 50x), la máxima resolución del equipo está entre 200 y 400 nm dependiendo del objetivo utilizado. Sin embargo por efectos de las aberraciones ópticas la resolución experimental real es del orden de los 500 nm. Por el contrario si se emplea el equipo como microscopio confocal, la resolución aumenta hasta los 300 nm aproximadamente.

Evidentemente esta resolución mejora drásticamente si se emplea el equipo como SNOM. Considerando la expresión 1.4 y teniendo en cuenta una distancia típica de trabajo entre la punta de SNOM y la superficie de la muestra del orden de los 15 nm, las resoluciones reales del microscopio, dependiendo del diámetro de las puntas utilizadas, son: entre 50 y 80 nm para las puntas usadas en el modo de iluminación y entre 80 y 125 nm aproximadamente para las empleadas en el modo de colección.

A continuación se describirán las características más destacadas de los principales componentes de este equipo SNOM:

i) Cabezal AFM/SNOM. El cabezal de AFM/SNOM fabricado por la empresa Nanonics Imaging Ltd. (figura 4.12), presenta la novedad de que permite adquirir los datos tanto desplazando la muestra como la punta. Esto es posible gracias a que el cabezal dispone de dos plataformas piezoeléctricas de barrido, una en la parte superior del cabezal para mover la punta y otra en la parte inferior para trasladar la muestra.

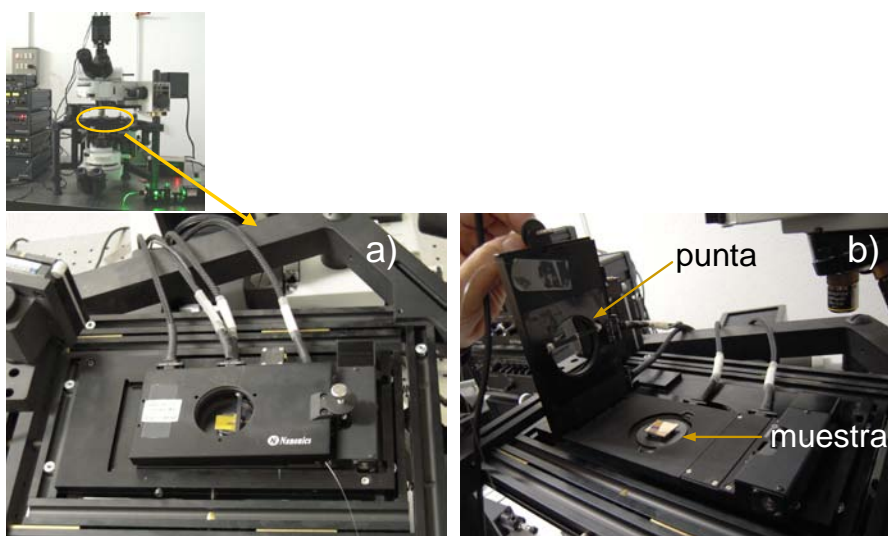


Figura 4.12 a) y b) Fotografías del cabezal de AFM/SNOM de la empresa Nanonics Imaging Ltd. En la fotografía b) se observa la estructura del cabezal con los dos sistemas piezoeléctricos de barrido. El cuadrado amarillo de las fotografías es una muestra dieléctrica con un recubrimiento de oro

En la configuración más común de medida (modo de iluminación) la punta y el detector se encuentran alineados sobre el mismo eje óptico. Debido a que en este caso la punta es la fuente de luz, es importante que durante la adquisición de datos no cambie dicho eje óptico, ya que de otro modo sería imposible determinar a qué es debido el

contraste óptico observado en los resultados de SNOM. En esta configuración por tanto las medidas se realizan moviendo la muestra y dejando la punta fija. Sin embargo existen ciertas aplicaciones para las que es más útil que la muestra mantenga su posición y el barrido se realice con la punta, como es el caso de estudiar la luz que emerge de un dispositivo óptico. Un ejemplo sería la situación mostrada en la figura 4.13a en donde se está inyectando luz en el interior de una fibra óptica por la parte inferior de ésta. Dicha fibra ha de permanecer invariante en su posición, ya que en caso contrario la inyección de luz dentro de la misma no se realizaría de manera homogénea, por lo que el barrido ha de ejecutarse moviendo la punta de colección. Mediante esta configuración de medida se puede obtener una distribución de la intensidad de luz que sale de la fibra, como se aprecia en la figura 4.13b donde también se representa el perfil de intensidad.

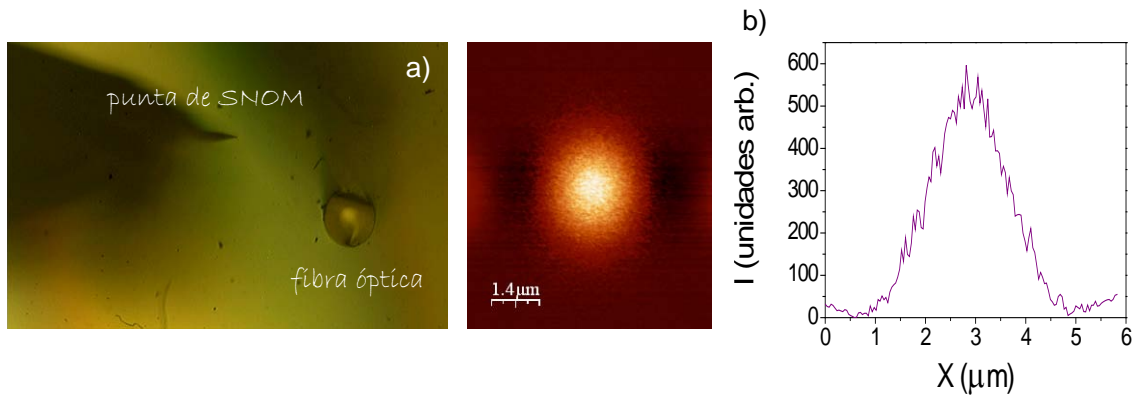


Figura 4.13 a) Imagen óptica de la punta de SNOM y del extremo de la fibra óptica a estudiar. b) Imagen SNOM en colección de la luz que emerge de dicha fibra y perfil

El rango de barrido de la plataforma piezoeléctrica en xy es de 100 μm, distancia considerablemente grande dado el tamaño de las estructuras que se suelen estudiar. La velocidad mínima de barrido es de 159 nm/s, con un paso mínimo de 0.002 nm, pudiéndose adquirir desde 2 hasta 1024 puntos por línea. A pesar de la gran versatilidad en la adquisición de datos es necesario encontrar un compromiso entre resolución y duración de la medida, encontrándose que las condiciones óptimas de barrido en las que se han adquirido la gran mayoría de los resultados presentados en esta memoria, son: 512 puntos y 20 ms por punto, donde el paso y la velocidad de cada medida dependerán del tamaño de barrido fijado. Por ejemplo para un barrido de 20x20 μm, con las condiciones experimentales mencionadas el paso de la medida será 39 nm y la velocidad de 1950 nm/s. En estas condiciones experimentales se obtiene una buena

resolución, siendo el tiempo de duración de la medida de 3,5 h aproximadamente. Si se aumenta la velocidad de barrido (para intentar disminuir la duración de la adquisición de las imágenes) pueden ocurrir efectos no deseados como el mostrado en la figura 4.14, donde se ve cómo al modificar la interacción entre la punta y la superficie, por la presencia de una estructura depositada sobre la muestra, el sistema no es capaz de reaccionar a tiempo modificando el tamaño y las formas reales del objeto. Este efecto es claramente visible al comparar el barrido de ida con respecto al de vuelta sobre el objeto a estudiar. Mientras el barrido de ida responde bien al primer borde del cuerpo y tarda un tiempo en recuperar la posición en la muestra al llegar al segundo borde, el barrido de vuelta realiza exactamente la operación complementaria, deformando la estructura real del cuerpo que se quiere estudiar.

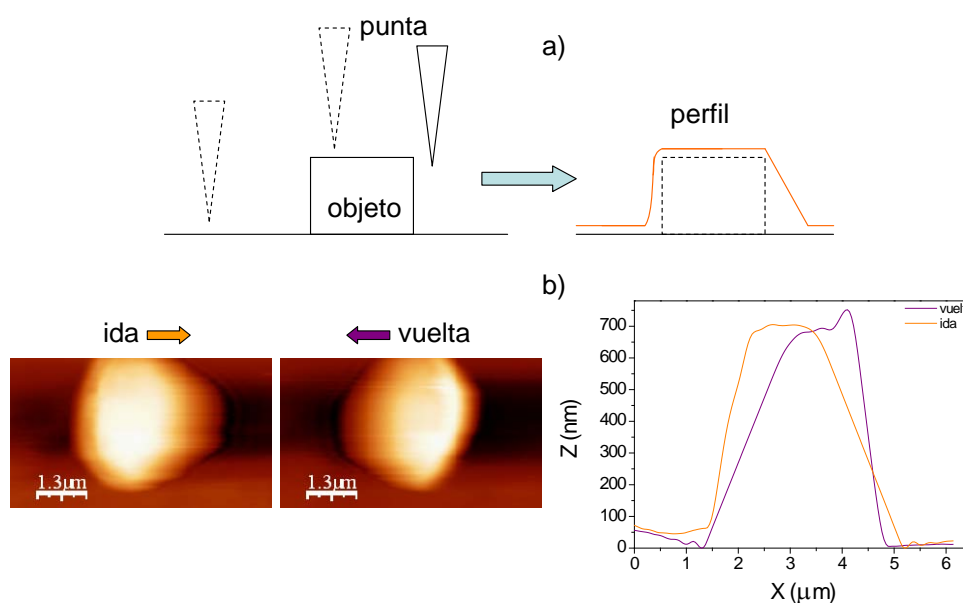


Figura 4.14 a) Esquema de la respuesta de la punta ante cambios en su interacción con la muestra. b) Ejemplo de SNOM donde se observan los perfiles de ida y vuelta sobre una columna de óxido de silicio depositada sobre un sustrato. Aunque los bordes del objeto estudiado son rectos, por la velocidad de barrido el borde final se inclina aumentando ligeramente de forma ficticia el tamaño del cuerpo

Los cabezales utilizados presentan además dos ventajas adicionales de gran importancia:

- ♦ Una es la facilidad para la colocación de las puntas. Éstas llevan dos piezas metálicas que coinciden en su posición con dos pequeños imanes existentes en la parte superior del cabezal (ver figura 4.12b ó 4.16), de modo que su colocación es relativamente sencilla.

♦ La otra ventaja es que debido a la forma y posición del cabezal en el sistema SNOM, éste tiene una gran versatilidad para acoplar el haz proveniente de un láser a la muestra. El acoplo se puede realizar desde un lateral o desde la parte inferior en el caso de que la muestra sea transparente, dada la facilidad para retirar la óptica del microscopio (se retira sencillamente soltando un imán). En este sentido se implementó una configuración adicional para realizar las medidas de colección, la cual consistió en acoplar el haz láser a través de la propia óptica del microscopio, posicionando el láser en el lugar de la lámpara del microscopio.

ii) Puntas AFM/SNOM. Existen dos tipos de puntas dependiendo de si únicamente se quiere estudiar la topografía de la muestra (puntas de AFM) o de si además se quieren realizar medidas ópticas (puntas de SNOM).

Las puntas de AFM de la empresa Nanonics utilizadas en este equipo son puntas de vidrio que trabajan en modo de contacto intermitente. Las puntas están montadas sobre un diapasón que oscila a la frecuencia de resonancia, para mantener mediante realimentación la distancia entre la punta y la superficie de la muestra (ver sección 3 del capítulo 1). Dado que existe un contacto intermitente con la superficie de la muestra y que las puntas son de vidrio, éstas están montadas con un cierto ángulo con respecto a la superficie (ver figura 4.15), de modo que cuando la punta toca la muestra, pandea evitando su ruptura y alargando la vida útil de la misma.

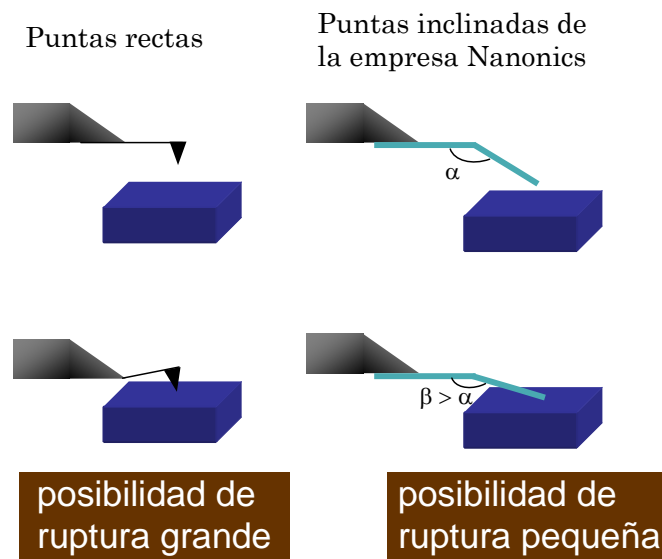


Figura 4.15 Representación esquemática de la utilidad de tener puntas inclinadas

El tamaño de las puntas dado por el fabricante (≥ 10 nm), implica que la resolución lateral que se obtiene es del orden de los 20 nm aproximadamente. Esta resolución es inferior a la que se alcanza con los equipos de AFM convencionales (~ 1 nm), pero mejor que la que se puede conseguir con las puntas SNOM disponibles para este equipo (ver página 77).

Las puntas SNOM suministradas para este microscopio presentan al igual que las puntas de AFM, un cierto ángulo con respecto a la superficie de las muestras a fin de evitar su deterioro. La mayoría de las puntas forman un ángulo del orden de los 120° , aunque en cualquier caso para ciertas medidas en que interese que la fibra de SNOM esté en posición perpendicular a la superficie de la muestra, pueden ser suministradas puntas con un ángulo de 90° . Con este sistema se consigue alargar la vida útil de las puntas siendo posible la realización de un número elevado de medidas con cada una de ellas. En la figura 4.16 se puede observar una fotografía de las puntas SNOM utilizadas.

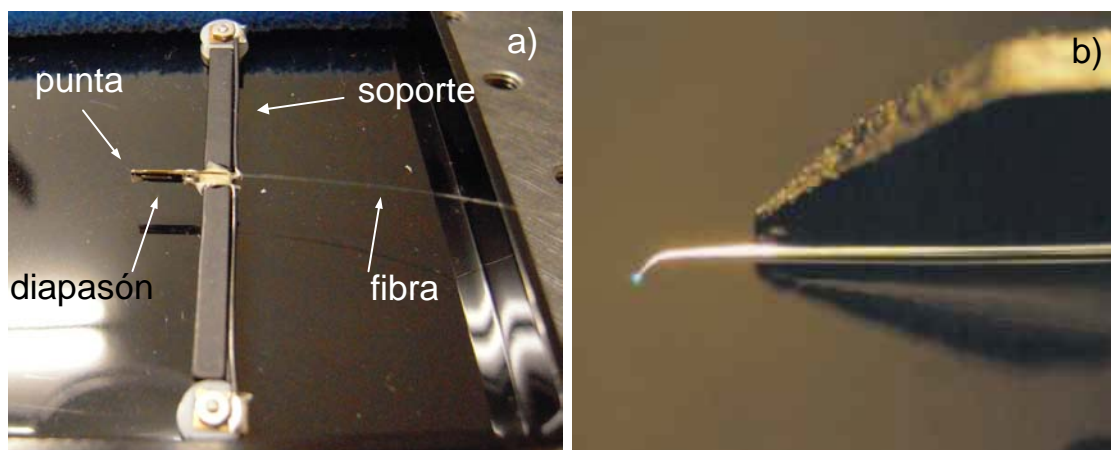


Figura 4.16 a) fotografía de una punta de SNOM de la empresa Nanonics. b) Detalle ampliado de la punta (Imagen obtenida de la página Web de la empresa Nanonics)

Esta característica de las puntas implica una ventaja adicional, que es que no es necesario montar las puntas de manera vertical (como ocurre en la mayoría de los equipos SNOM), siendo el espacio que ocupa el cabezal de SNOM el mismo que el de un cabezal de AFM convencional. Esto permite utilizar objetivos de larga distancia de trabajo para observar ópticamente la muestra a gran escala, facilitando la elección de la zona que será barrida por la punta. Este detalle es de gran importancia y utilidad para la

observación de muestras en las que lo que se quiere investigar se encuentra muy localizado y no distribuido de manera uniforme, como es el ejemplo presentado en la figura 4.17, donde cada una de las tiras oscuras de la imagen presenta una distribución periódica de agujeros, cuyas dimensiones eran de 500 nm de diámetro. Dado que dichas estructuras se encontraban únicamente en una región de aproximadamente $175 \times 175 \mu\text{m}$ (teniendo la muestra un tamaño de $\sim 2 \times 1 \text{ cm}$), el realizar las medidas a ciegas habría sido una tarea complicada y poco productiva dada la duración de cada barrido.

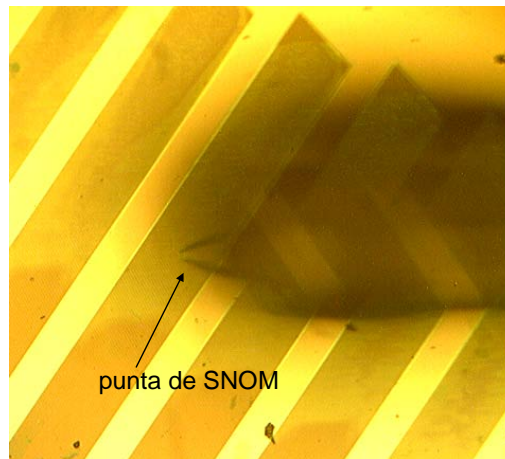


Figura 4.17 a) Imagen óptica en transmisión de la estructura fotónica fabricada mediante radiación láser pulsada y b) su imagen SNOM correspondiente

Los diámetros de las puntas utilizadas han sido de 50 y 100 nm para las medidas que se realizan en reflexión y transmisión y 100, 150, 200 y 300 nm para las medidas en la configuración de colección. Todas las puntas manejadas están recubiertas de una aleación de oro y cromo de espesor $0.2 \mu\text{m}$ para aumentar la transmisión de luz a través de la abertura, minimizar la dispersión y disminuir las pérdidas en la posición donde la fibra se curva. Aunque dicho espesor va disminuyendo a medida que se aproxima al ápice de la fibra, da lugar inevitablemente a que el tamaño efectivo de las puntas sea mayor al mencionado. El tamaño de la punta es de suma importancia porque además de influir en la resolución del SNOM, en el caso de ser comparable al motivo que se desea medir, la interacción entre la punta y la muestra da lugar a un efecto de convolución (figura 4.18) que produce un aumento en el tamaño del objeto que se está estudiando.

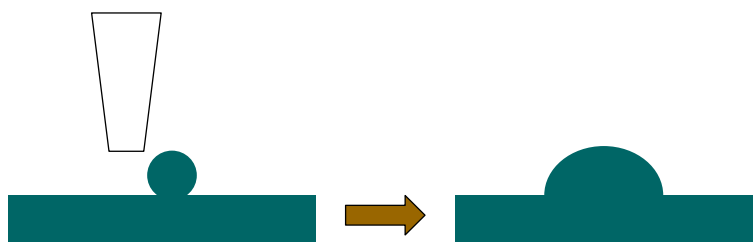


Figura 4.18 Representación esquemática de la deformación de los objetos producida como consecuencia de la influencia del tamaño de la punta en la medida

iii) Sistema de acoplo del haz láser a la fibra óptica. Una de las acciones más críticas en el manejo de este microscopio es el acoplo del haz láser a la fibra de SNOM, de modo que éste se propague por el núcleo de la fibra y no por el recubrimiento. Para ello es necesario que el extremo de la fibra por donde se va a acoplar el haz láser presente un corte limpio y no esté ni curvado ni inclinado, lo que dificultaría enormemente dicho acoplo. La mejor manera de conseguir esto consiste, en una vez retirado el recubrimiento plástico que protege el núcleo de la fibra, producir una pequeña muesca, partiéndola después aplicando una tensión (nunca cortándola). En la figura 4.19 se observa una fotografía de la herramienta utilizada para tal fin. Ésta consta de un canal que permite la fijación de la fibra, una pequeña cuchilla para producir la muesca en el núcleo de la fibra y una base elástica que se puede doblar, de modo que la fibra se partirá por el punto donde se ha producido la muesca.

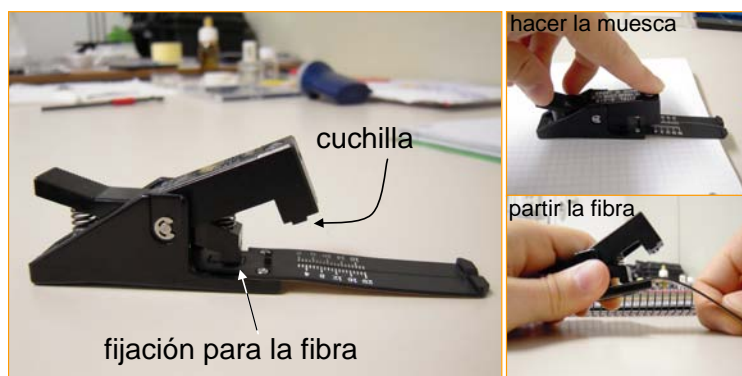


Figura 4.19 Fotografía de la herramienta utilizada para cortar la fibra y modo de crear la muesca en el núcleo de la fibra y su rotura final

Una vez conseguido que el corte de la fibra sea lo más recto posible, la luz proveniente de un haz láser es acoplada con ayuda de un objetivo de microscopio 20x

de apertura numérica 0.4. Para ello se utiliza el sistema de acoplo de la casa Newport mostrado en la figura 4.20a, en el que la fibra se sujeta en la dirección del haz láser. El láser utilizado fue un Nd:YAG ($\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) de la casa Lambdapro Technologies Ltd, bombeado por un diodo láser de 1.2 W, operando en el segundo armónico del Nd cuya longitud de onda es 532 nm. Para esta longitud de onda la potencia máxima de salida es de 500 mW, pudiéndose controlar mediante un filtro neutro gradual.

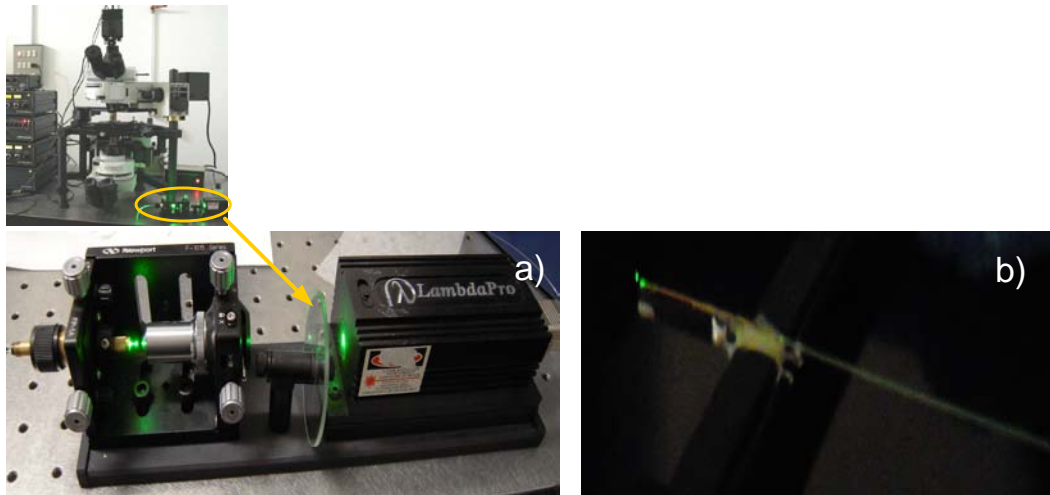


Figura 4.20 a) Fotografía del sistema utilizado para acoplar el haz láser a la fibra óptica. b) fotografía de la punta de SNOM cuando la luz del láser está acoplada a la fibra

El resultado de este acoplo se puede ver en la figura 4.20b. En ella se presenta una fotografía de la punta de la fibra óptica cuando el haz láser está acoplado. En la fotografía se aprecia un punto de color verde (correspondiente a la longitud de onda de 532 nm del láser empleado) separado del diapasón. Esto indica que el haz láser está realmente saliendo por la punta de la fibra y no por el recubrimiento, ya que en ese supuesto se vería la envoltura de la fibra también de color verde. Del mismo modo se aprecia una mancha verde justo en el final del diapasón, lo que significa que el acoplo no es perfecto y por tanto en la posición donde la fibra está doblada (con el ángulo mencionado en el punto ii) de esta sección) las pérdidas son muy grandes. La situación deseable para realizar las medidas es aquella en la que toda la luz sale por la punta de SNOM sin pérdidas a lo largo de la fibra, pero en este supuesto, dicho punto luminoso es tan pequeño, del orden de 100 nm, que es difícil obtener una fotografía óptica con la resolución suficiente.

iv) Detección de la intensidad de luz. En las medidas de SNOM, en cualquiera de las tres configuraciones posibles, las intensidades de luz son en general débiles, lo que obliga a utilizar sistemas de detección de alta sensibilidad.

Así en el caso de trabajar en el modo de iluminación, en el que como se mencionó anteriormente la detección se realiza en campo lejano, la intensidad de luz retrodispersada por la superficie de la muestra (o transmitida a través de la misma) es colectada por un objetivo de microscopio y focalizada sobre un detector. Para esta configuración de medida el detector utilizado ha sido un fotodiodo de avalancha (APD) de la empresa PerkinElmer (figura 4.21a), que se acopla a la óptica del microscopio mediante la pieza que se detalla en la figura 4.21c.



Figura 4.21 a) Fotografía del APD utilizado. b) Otra fotografía del APD donde se puede ver el “pinhole” a la entrada del detector. c) Fotografía de la pieza mecánica que permite el acoplo del APD al microscopio y el filtro interferencial, que filtra todas las longitudes de onda menos los 532 nm del láser utilizado

Con el fin de conseguir que la luz espuria que no precede del haz láser alcance el detector, se hace pasar la señal a través de un pequeño agujero colocado a la entrada del detector, que opera como un filtro espacial. Para mayor seguridad se utilizó un filtro interferencial a 532 nm (ver figuras 4.21b y c). El detector suministrado por la empresa PerkinElmer, es un fotodiodo de avalancha de silicio sensible en el rango de longitudes de onda desde los 400 nm hasta los 1060 nm. La eficiencia de detección a la longitud de onda de 532 nm es del orden de un 60%, como puede verse en la gráfica de la respuesta espectral del detector mostrada en la figura 4.22.

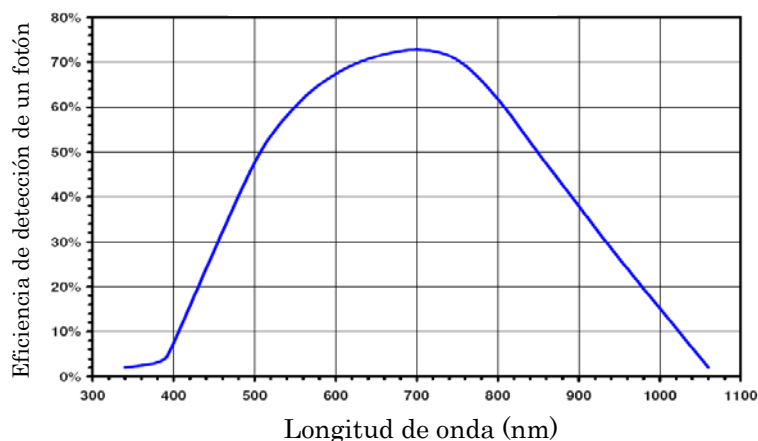


Figura 4.22 Eficiencia de detección en función de la longitud de onda para el detector utilizado, que dentro del catálogo de PerkinElmer se identifica como SPCM-AQRH-14. Gráfica obtenida de la página Web de la empresa

Como ya se mencionó en la descripción del modo de colección, en este caso la luz transmitida a través de la muestra es colectada en campo cercano por la punta de SNOM y guiada posteriormente hasta un detector. Esta configuración implica que sea necesario utilizar un detector de mayor sensibilidad, que en nuestro caso fue un tubo fotomultiplicador (PM) también de la casa PerkinElmer (ver figura 4.23a).

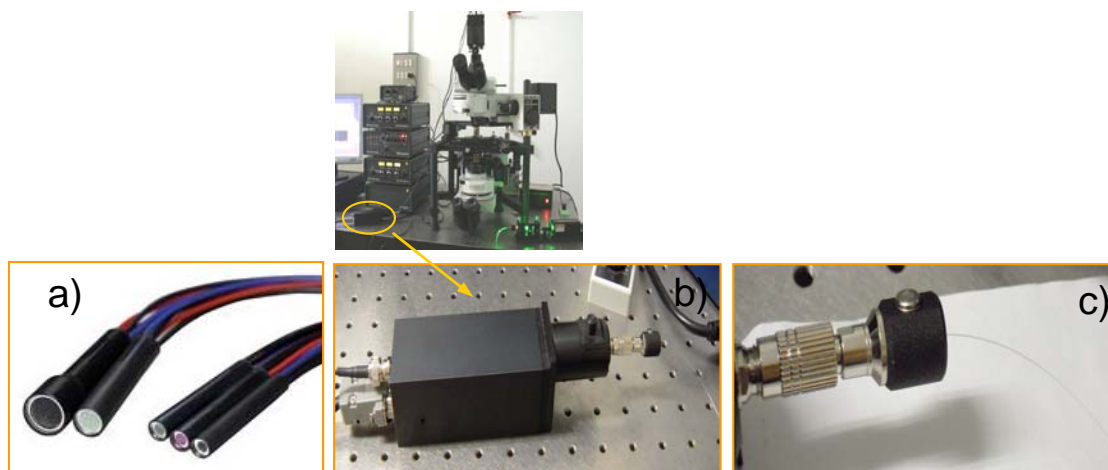


Figura 4.23 a) Tubo fotomultiplicador de la casa PerkinElmer. b) Fotografía del detector en el interior de la caja negra, con habitáculo para el filtro interferencial y acoplador de fibra óptica. c) Detalle del acoplador de fibra óptica

Para evitar que la luz ambiente pudiese influir en los resultados experimentales, se instaló el PM en el interior de una caja negra, la cual incluía un sistema para acoplar la fibra óptica (ver figuras 4.23b y c) y un receptáculo que permitía introducir un filtro

interferencial, en particular uno a 532 nm. De esta forma se asegura que al PM sólo llegan fotones de longitud de onda $\lambda = 532$ nm. La figura 4.24 muestra la respuesta del PM en función de la longitud de onda. El fotocátodo del PM usado en este trabajo es un CPM-942, que como se aprecia de la figura, es sólo sensible en el rango de longitudes de onda desde los 150 nm hasta los 650 nm, con una eficiencia cuántica en torno al 10% para la longitud de onda de 532 nm.

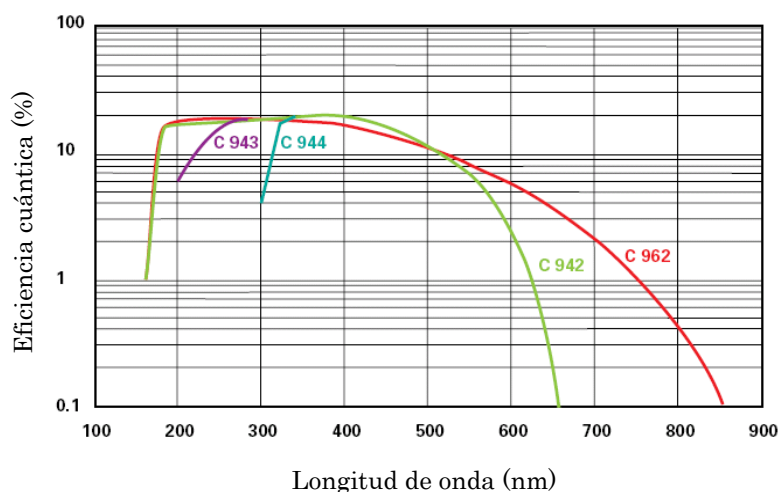


Figura 4.24 Gráfica que muestra la eficiencia de detección del fotocátodo en función de la longitud de onda. Gráfica obtenida de la página Web de la empresa

La señal obtenida por cualquiera de los dos detectores es enviada a un contador fotón a fotón de la casa Nanonics, cuya salida está conectada a un ordenador a fin de registrar la señal detectada.

El control del experimento se hace a través del programa de adquisición de datos de la empresa Nanonics NWS 1.0, el cual permite controlar todos los parámetros tanto de aproximación de la punta a la muestra, como de barrido. Finalmente para el tratamiento de imágenes se ha utilizado el programa WSxM 4.0 de la empresa Nanotec Electronica [48].

Bibliografía

- [1] J. Valasek, “Piezo-electric and allied phenomena in Rochelle salt”, *Phys. Rev.* **17**, 475 (1921)
- [2] H. Allik, K.M. Webman, J.T. Hunt, “Vibrational response of sonar transducers using piezoelectric finite elements,” *J. Acoust. Soc. Am.* **56**, 1782 (1974)
- [3] G. Binnig, C.F. Quate, C. Gerber, “Atomic Force Microscope”, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930 (1986)
- [4] Z.L. Wang, J.H. Song, “Piezoelectric nanogenerators based on zinc oxide nanowire arrays”, *Science* **312**, 242 (2006)
- [5] J. Padilla, W. Zhong, D. Vanderbilt, “First-principles investigation of 180° domain walls in BaTiO_3 ”, *Phys. Rev. B* **53**, 5969 (1996)
- [6] S. Kim, V. Gopalan, “Optical index profile at an antiparallel ferroelectric domain wall in lithium niobate”, *Mater. Sci. Eng. B* **120**, 91 (2005)
- [7] V. Bermúdez, F. Caccavale, C. Sada, F. Segato, E. Diéguez, “Etching effect on periodic domain structures of lithium niobate crystals”, *J. Cryst. Growth* **191**, 589 (1998)
- [8] E. Cantelar, J.A. Sanz-García, R.E. Di Paolo, J.E. Muñoz-Santiuste, F. Cussó, “On-centered growth of periodically poled $\text{LiNbO}_3\text{:Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ crystals”, *Ferroelectrics* **334**, 125 (2006)
- [9] S.N. Zhu, Y.Y. Zhu, Z.Y. Zhang, H. Shu, H.F. Wang, J.F. Hong, C.Z. Ge, N.B. Ming, “ LiTaO_3 crystal periodically poled by applying an external pulsed field”, *J. Appl. Phys.* **77**, 5481 (1995)
- [10] Z.D. Xie, G. Zhao, P. Xu, Z.D. Gao, S.N. Zhu, “Study of optical elastic scattering in a quasiperiodically poled LiTaO_3 crystal”, *J. Appl. Phys.* **101**, 056104(2007)
- [11] E. Soergel, “Visualization of ferroelectric domains in bulk single crystals”, *Appl. Phys. B* **81**, 729 (2005)
- [12] V. Bermúdez, A. Gil, L. Arizmendi, J. Colchero, A.M. Baró, E. Diéguez, “Techniques of observation and characterization of the domain structure in periodically poled lithium niobate”, *J. Mater. Res.* **15**, 2814 (2000)
- [13] M. Houé, P.D. Townsend, “An introduction to methods of periodic poling for 2nd-harmonic generation”, *J. Phys. D* **28**, 1747 (1995)
- [14] K.S. Rao, K.Y. Yoon, “Review of electrooptic and ferroelectric properties of barium sodium niobate single crystals”, *J. Mater. Sci.* **38**, 391 (2003)

-
- [15] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, R.L. Byer, "Quasi phase matched 2nd harmonic generation - tuning and tolerances", *J. Quantum Electron.* **28**, 2631 (1992)
 - [16] Y.S. Cho, K. Fujimoto, Y. Hiranaga, Y. Wagatsuma, A. Onoe, K. Terabe, K. Kitamura, "Tbit/inch(2) ferroelectric data storage based on scanning nonlinear dielectric microscopy", *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4401 (2002)
 - [17] N.G.R. Broderick, G.W. Ross, H.L. Offerhaus, D.J. Richardson, D.C. Hanna, "Hexagonally poled lithium niobate: A two-dimensional nonlinear photonic crystal", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4345 (2000)
 - [18] A.L. Aleksandrovskii, A.I. Nagaev, "Electrooptic diffraction of light by antiparallel ferroelectric domains in $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ crystals", *Sov. Phys. Crystallogr.* **28**, 53 (1983)
 - [19] P.F. Bordui, R.G. Norwood, C.D. Bird, G.D. Calvert, "Composition uniformity in growth and poling of large-diameter lithium-niobate crystals", *J. Cryst. Growth* **113**, 61 (1991)
 - [20] L. Arizmendi, "Photonic application of lithium niobate crystals" *Phys. Stat. Solidi A* **201**, 253 (2004).
 - [21] G. Burns, D.F. Okane, "Transition temperature variations in sodium barium niobate and related compositions", *Phys. Lett.* **28**, 776 (1969)
 - [22] R.G. Smith, J.E. Guesic, H.J. Leveinstein, J.J. Rubin, S. Singh, L.G. Van Uitert, "Continuous optical parametric oscillation in $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ ", *Appl. Phys. Lett.* **12**, 308 (1968)
 - [23] A. Ródenas, D. Jaque, F. Agulló-Rueda, A. A. Kaminskii, "Self-activated $\text{Nd}^{3+}:\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{12}$ optical super-lattices: Micro characterization and non-collinear laser light generation", *Opt. Comm.* **262**, 220 (2006).
 - [24] S.N. Zhu, Y.Y. Zhu, N.B. Ming, "Quasi-phase-matched Third harmonic generation in a quasi periodic optical superlattice", *Science* **278**, 843 (1997)
 - [25] J. Lamela, D. Jaque, A. Ródenas, F. Jaque, G.A. Torchia, J.R. Vazquez, C. Mendez, L. Roso, "Near-field-optical-microscopy studies of micro-modifications caused by femtosecond laser irradiation in lithium niobate crystals", *Appl. Phys. A* **93**, 177 (2008)
 - [26] P.D. Townsends, P.J. Chandler, L. Zhang, "Optical Effects of Ion Implantation", Cambridge University Press, Cambridge (1994)
 - [27] R.W. Boyd, "Nonlinear optics", Academic Press, New York 1992

-
- [28] N. Huot, R. Stoian, A. Mermillod-Blondin, C. Mauclair, E. Audouard, "Analysis of the effects of spherical aberration on ultrafast laser-induced refractive index variation in glass", *Opt. Express* **15**, 12395 (2007)
- [29] A. Ródenas, PhD tesis, Universidad Autónoma de Madrid (2009)
- [30] K.M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, K. Hirao, "Writing waveguides in glass with a femtosecond laser", *Opt. Lett.* **21**, 1729 (1996)
- [31] J. Burghoff, S. Nolte, A. Tünnermann, "Origins of waveguiding in femtosecond laser-structured LiNbO₃", *Appl. Phys. A* **89**, 127 (2007)
- [32] www.baikowskichimie.com
- [33] A. Ródenas, G.Y. Zhou, D. Jaque, M. Gu, "Direct laser writing of three-dimensional photonic structures in Nd:yttrium aluminum garnet laser ceramics", *Appl. Phys. Lett.* **93**, 151104 (2008).
- [34] G.A. Torchia, A. Rodenas, A. Benayas, E. Cantelar, L. Roso, D. Jaque, "Highly efficient laser action in femtosecond-written Nd : yttrium aluminum garnet ceramic waveguides", *Appl. Phys. Lett.* **92**, 111103, (2008).
- [35] J. Koglin, U.C. Fischer, H. Fuchs, "Material contrast in scanning near-field optical microscopy at 1-10 nm resolution", *Phys. Rev. B* **55**, 7977 (1997).
- [36] B. Hecht, B. Sick, U.P. Wild, V. Deckert, R. Zenobi, O.J. Martin, D.W. Pohl, "Scanning near-field optical microscopy with aperture probes: Fundamentals and applications", *J. Chem. Phys.* **112**, 7761 (2000)
- [37] V.M. Shalaev, A.K. Sarychev, "Nonlinear optics of random metal-dielectric films", *Phys. Rev. B* **57**, 13265 (1998)
- [38] R.M. Stäockle, V. Deckert, C. Fokas, R. Zenobi, "Controlled formation of isolated silver islands for surface-enhanced Raman scattering", *Applied Spectroscopy* **54**, 1577 (2000)
- [39] F. Zenhausern, Y. Martin, H.K. Wickramasinghe, "Scanning interferometric apertureless microscopy - optical imaging at 10 angstrom resolution", *Science* **269**, 1083 (1995)
- [40] B. Knoll, F. Keilmann, "Enhanced dielectric contrast in scattering-type scanning near-field optical microscopy", *Opt. Commun.* **182**, 321 (2000)
- [41] B. Hecht, H. Heinzelmann, D.W. Pohl, "Combined aperture SNOM/PSTM - best of both worlds", *Ultramicroscopy* **57**, 228 (1995)
- [42] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of nano-optics*, (Cambridge University Press, Cambridge 2006)

-
- [43] E. Betzig, M. Isaacson, A. Lewis, “Collection mode near-field scanning optical microscopy”, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 2088 (1987)
- [44] I. Horsch, R. Kushe, O. Marti, B. Weigl, K.J. Ebeling, “Spectrally resolved near-field mode imaging of vertical cavity semiconductor lasers”, *J. Appl. Phys.* **79**, 3831 (1996)
- [45] I. Cestier, D. Gready, U. Ben-Ami, G. Einstein, S. Combrie, Q. Tran, A. de Rossi, “Near field imaging of a GaAs photonic crystal cavity and waveguide using a metal coated fiber tip”, *Opt. Express* **17**, 15274(2009)
- [46] J. Lamela, A. Rodenas, G. Lifante, D. Jaque, F. Jaque, A.A. Kaminskii, “Effects of laser light confinement in periodically poled orthorhombic non-centrosymmetric $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ crystals”, *Laser Phys. Lett.* **5**, 291 (2008).
- [47] E.R. Méndez, J.J. Greffet, R. Carminati, “On the equivalence between the illumination and collection modes of the scanning near-field optical microscope”, *Opt. Comm.* **142**, 7 (1997)
- [48] I. Horcas, R. Fernández, J.M. Gómez-Rodríguez, J. Colchero, J. Gómez-Herrero, A.M. Baró, “WSXM: A software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology” *Rev. Sci. Instrum.* **78**, 013705 (2007)

5 Resultados experimentales y discusión

“Un científico debe tomarse la libertad de plantear cualquier cuestión y de dudar de cualquier afirmación”

Julius Robert Oppenheimer (1904-1967)

La frase con la que se ha querido comenzar este capítulo expresa el planteamiento que se va a desarrollar a continuación y que constituye el corazón de esta tesis, ya que la respuesta a la pregunta “¿por qué se produce un contraste óptico tan elevado en cristales con estructuras ferroeléctricas periódicas?”, obligó a la necesidad de dudar de ciertas afirmaciones que en la actualidad se aceptan acerca de esta cuestión.

Es por ello que, sin ánimo de que este trabajo parezca poco riguroso, se han aceptado dos posibles explicaciones para dicho efecto, por considerarse que ambas son factibles. Una siguiendo la corriente mayoritaria, que afirma que la variación del índice de refracción en muestras con dominios ferroeléctricos periódicos se encuentra asociada a las fronteras de dominio, y otra por el contrario, que acepta que los dominios con distinta polarización no son indistinguibles en propiedades como su índice de refracción. Ambas hipótesis se presentarán a continuación, distinguiendo claramente cuando las estructuras ferroeléctricas periódicas fueron creadas mediante la aplicación

de un campo eléctrico externo, del caso en el que dichas estructuras se obtuvieron durante el proceso de crecimiento cristalino.

En este capítulo igualmente, se mostrarán los resultados obtenidos acerca del confinamiento óptico en estructuras producidas mediante irradiación con luz láser, tanto para el caso de redes holográficas grabadas en $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$, como para el Nd:YAG dañado mediante radiación láser pulsada, intentando esclarecer en este último caso los fenómenos por los cuales se produce la variación de índice de refracción al irradiar con pulsos láseres de femtosegundos.

5.1 Confinamiento de luz en materiales ferroeléctricos con dominios periódicos

Como ya se indicó en el capítulo 4, en este trabajo se han utilizado tres muestras distintas, escogidas tanto por la facilidad de obtener en ellas las estructuras deseadas, como por su interés y utilidad para la industria y el desarrollo de dispositivos ópticos. Primeramente se presentaran los resultados correspondientes a los dos cristales en los que las estructuras de dominios ferroeléctricos se crearon durante el proceso de crecimiento (niobato de litio y niobato de bario y sodio) y se terminará con el estudio sobre una muestra de tantalato de litio, en la que los dominios ferroeléctricos periódicos se fabricaron mediante la aplicación de un campo eléctrico externo.

5.1-1 El niobato de bario y sodio impurificado con neodimio

La obtención del patrón de dominios ferroeléctricos en esta muestra, se realizó durante el proceso de crecimiento cristalino mediante la técnica “Czochralski fuera de eje” (ver capítulo 4). A pesar de que controlar los factores que afectan a la fabricación de las estructuras periódicas durante el proceso de crecimiento es más complicado que su fabricación mediante la aplicación de campo eléctrico, se escogió este método dada la necesidad de obtener estructuras periódicamente polarizadas en volumen, ya que mediante la aplicación de campo eléctrico en muestras de más de 0.5 mm de espesor, los dominios no quedan bien definidos en profundidad [1]. En las condiciones en las

que se creció este cristal (a lo largo del eje z y con el eje ferroeléctrico perpendicular al eje de crecimiento), provocó que la estructura de los dominios ferroeléctricos apareciera a lo largo del plano x - y , tal y como se muestra en la figura 5.1 [2], donde se observa cómo la estructura de dominios está constituida por láminas con polarización espontánea opuesta.

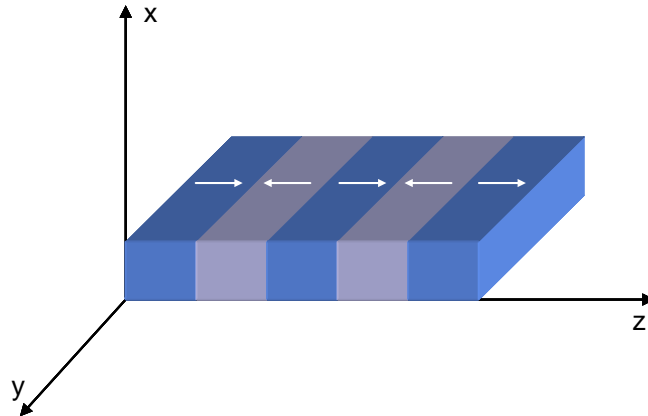


Figura 5.1 Representación esquemática de la estructura de dominios ferroeléctricos presente en la muestra de BNN:Nd. La dirección de polarización es a lo largo del eje z (eje ferroeléctrico que en este caso coincide con el eje de crecimiento)

4.1-1.1 Caracterización morfológica de las estructuras

El primer paso en el estudio de este material fue comprobar la existencia de un patrón de dominios ferroeléctricos en el mismo. Para ello se pulió la muestra con un cierto ángulo con respecto al plano en el que aparecieron los dominios (plano x - y) y se la sometió a un ataque químico diferencial por inmersión, a temperatura ambiente, en una mezcla de ácidos $\text{HF}:\text{HNO}_3$ en la proporción 1:2, esperando obtener un esquema similar al presentado en la figura 5.2 a). El resultado del ataque se muestra en la figura 5.2 b), donde se presenta una imagen de transmisión tomada con un microscopio óptico después de haber realizado el ataque químico.

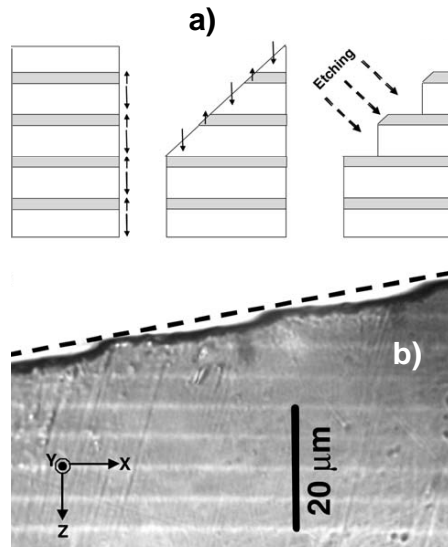


Figura 5.2 a) Diagrama esquemático del proceso de ataque realizado a la muestra de BNN. b) Imagen de microscopía óptica de la muestra tras realizar el ataque químico, que revela la presencia de dominios ferroeléctricos. La línea punteada representa el borde original del cristal. Imagen obtenida de la referencia [3]

Con este resultado, se pudo determinar que el patrón de dominios ferroeléctricos presente en la muestra de BNN estaba constituido por una secuencia de dominios opuestos y de distinto tamaño, que eran en promedio de 1.1 y 3.9 μm de anchura con variaciones del 20% dependiendo de la zona de la muestra estudiada, lo que implica que la periodicidad de los dominios ferroeléctricos (entre positivo y positivo o entre negativo y negativo) era de $5 \pm 1 \mu\text{m}$. Rodenas et al [3] explicaron esta diferencia en el tamaño de los dominios ferroeléctricos por la existencia de distribuciones periódicas de impurezas en el cristal. Este hecho fue comprobado tanto con experimentos de luminiscencia, donde se observó una clara modulación espacial en la intensidad de la emisión luminiscente correspondiente a la transición $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ del ión Nd^{3+} que coincidía con la distribución de dominios ferroeléctricos observada, como mediante medidas Raman en las que se observó un decaimiento de la intensidad Raman en los dominios positivos, relacionado con el aumento de la concentración de iones Nd^{3+} en los mismos.

Por este motivo, es factible suponer que la presencia de una distribución periódica de dominios ferroeléctricos antiparalelos esté acompañada de una variación periódica en el índice de refracción. Esto inspiró que se llevaran a cabo experimentos de

difracción láser, a fin de verificar la existencia de una variación de índice de refracción en la muestra [4].

5.1-1.2 Resultados de los experimentos de difracción láser

Previamente al estudio óptico de la muestra, se tuvo especial cuidado en pulir el cristal hasta grado óptico (rugosidades de la superficie $\sim \lambda/4$). En la figura 5.3 a) se observa una imagen de AFM de la superficie tomada tras el pulido, donde el perfil topográfico (Fig 5.3 b)) a lo largo de la línea azul mostrada en la figura revela que la rugosidad media de la superficie era de aproximadamente 2-3 nm y que no existía ningún resto topográfico de la estructura producida tras el ataque químico previamente realizado.

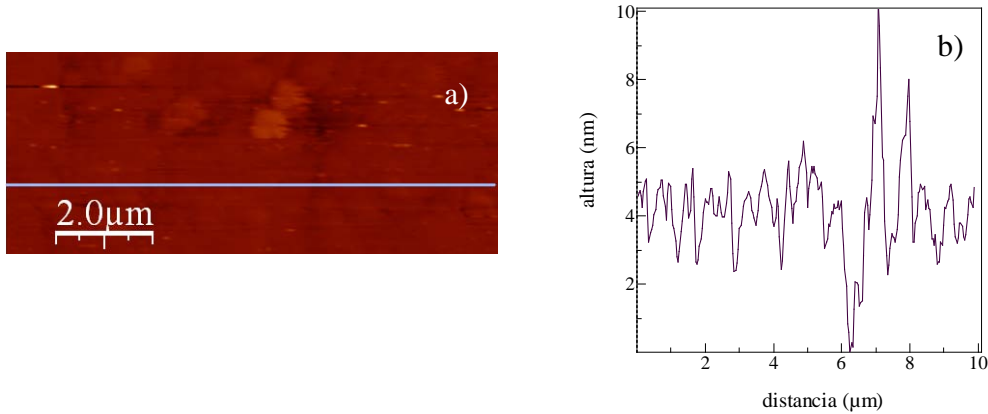


Figura 5.3 a) Imagen de AFM de la superficie del cristal de BNN:Nd tras el pulido. b) Perfil topográfico correspondiente a la línea azul marcada en la figura a)

Las primeras medidas de difracción se realizaron en incidencia normal, cuya configuración experimental puede verse en la figura 5.4, donde la muestra es iluminada con un haz láser de He-Ne ($\lambda \sim 633$ nm), colimado perpendicular a la superficie de la muestra y paralelo a los dominios ferroeléctricos. Para poder controlar con exactitud la posición de la muestra con respecto al haz láser, se colocó la muestra en un posicionador micrométrico x-y-z.

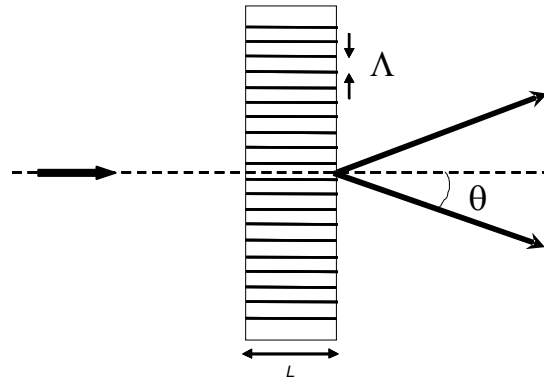


Figura 5.4 Representación esquemática del experimento de difracción en incidencia normal

El patrón de difracción en campo lejano obtenido (ver recuadro en la figura 5.5) muestra además del pico central, dos picos secundarios situados simétricamente a 6.8° , lo que demuestra la existencia de una modulación periódica del índice de refracción. Teniendo en cuenta la posición de los picos y considerando que el índice de refracción del BNN es en promedio 2.2 [5], se deduce que el periodo de la modulación de índice de refracción es aproximadamente $\Lambda = 5.3 \mu\text{m}$. Esta coincidencia entre el periodo de la modulación de índice medido mediante el experimento de difracción y el periodo de los dominios ferroeléctricos medido tras someter la muestra al ataque químico diferencial, refuerza la idea de que la modulación existente del índice de refracción es consecuencia de la presencia de dominios ferroeléctricos.

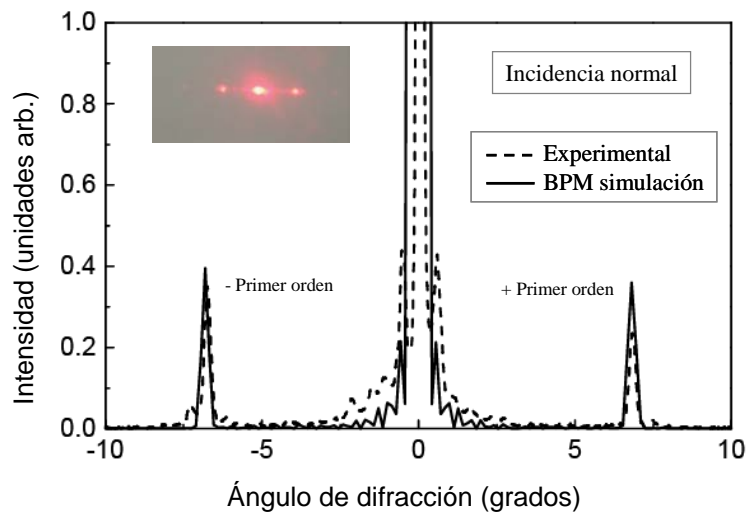


Figura 5.5 Patrón de difracción obtenido bajo incidencia normal del cristal de BNN:Nd, usando $\lambda \sim 633 \text{ nm}$ (línea punteada de la figura). La línea continua representa el resultado obtenido de la simulación BPM

En la figura 5.5, junto al resultado experimental obtenido, se presentan los valores teóricos (línea continua) deducidos mediante la simulación BPM (*Beam Propagation Method*, ver capítulo 3) en campo lejano, considerando un periodo de $5.3 \mu\text{m}$ y una longitud de interacción (igual a la anchura de la muestra) de 1 mm . Destacar que la simulación no solo reproduce la posición de los picos sino también su anchura, lo que es una clara evidencia de que la estructura ferroeléctrica periódica fabricada en la muestra de BNN:Nd es la responsable de la modulación del índice de refracción.

A pesar de que la simulación BPM permite conocer la posición espacial de los máximos de difracción con bastante precisión, resulta más complicado, utilizando esta configuración, obtener un valor fiable de la variación de índice de refracción. Sin embargo, si consideramos que el patrón de difracción responde a un régimen Bragg, sí que se puede obtener un valor aproximado de la modulación del índice de refracción existente en el cristal, como consecuencia de la presencia de dominios ferroeléctricos periódicos. Para ello se repitieron los experimentos de difracción bajo incidencia Bragg (ver configuración experimental en el recuadro de la figura 5.6), donde al representar la intensidad difractada en función del ángulo Bragg de incidencia (Fig. 5.6), se pudo observar cómo se conseguía que prácticamente toda la intensidad se concentrara en el máximo de difracción de primer orden, lo que demuestra que efectivamente la difracción provocada por la estructura de dominios ferroeléctricos obedece el régimen Bragg.

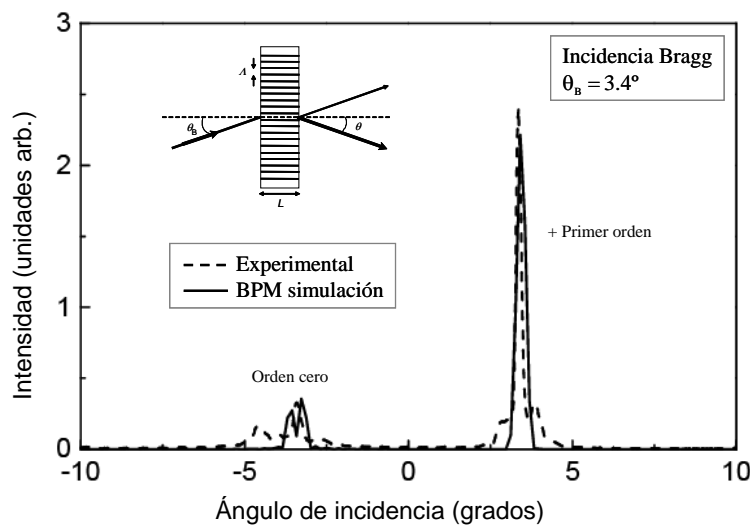


Figura 5.6 Distribución angular de intensidades para la luz difractada bajo incidencia Bragg (línea punteada) en el cristal de BNN:Nd. La simulación BPM obtenida se representa mediante una línea continua

Como puede observarse en la figura 5.6 existe una excelente concordancia entre los valores experimentales y los obtenidos de la simulación BPM. A partir del cociente entre la intensidad del primer orden de difracción y la del orden cero, pudo estimarse que la variación de índice de refracción en el cristal de BNN era $\Delta n \sim 10^{-4}$ [4]. Este valor es comparable con los obtenidos por otros autores al medir las variaciones de índice de refracción existentes en muestra periódicamente polarizadas de SBN, LiNbO_3 o LiTaO_3 [6, 7].

5.1-1.3 Resultados de los experimento de SNOM

Antes de comenzar con la exposición de los resultados experimentales obtenidos mediante la técnica SNOM, conviene definir el concepto de contraste óptico que será utilizado a lo largo del trabajo. La figura 5.7 representa un perfil típico de SNOM que sirve para fijar los siguientes parámetros: I , intensidad de la luz en cada posición y $\Delta I = I - I_0$, donde I_0 es el valor mínimo de dicha intensidad. Ambos parámetros definen el valor del contraste óptico normalizado $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)$ que se utilizará para representar los resultados obtenidos de los experimentos SNOM.

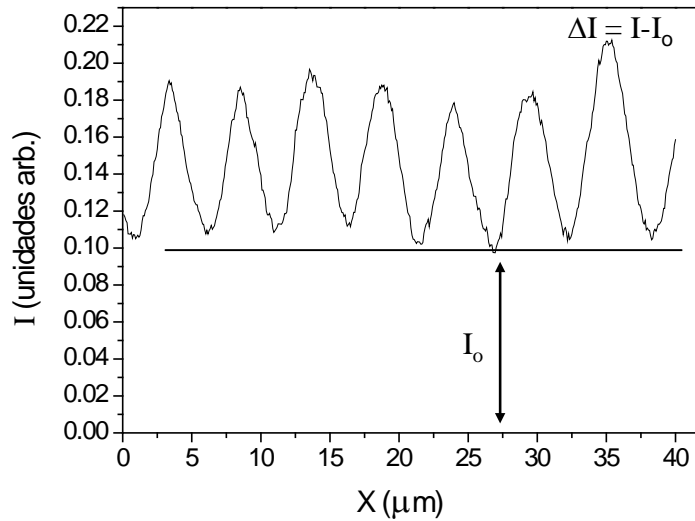


Figura 5.7 Perfil típico de SNOM en unidades arbitrarias, donde se presentan las magnitudes I e I_0 necesarias para definir el contraste óptico normalizado $\Delta I/I$

i) Medidas SNOM en el modo reflexión

Las figuras 5.8a y 5.8b muestran las imágenes de SNOM y AFM respectivamente, adquiridas de manera simultánea en una muestra de Nd:BNN. En la imagen de AFM aunque se observa una topografía relacionada con la presencia de partículas de polvo y defectos de superficie, como resultado del pulido al que fue sometida la muestra (rugosidad media < 5 nm) no se detecta ningún rastro del patrón de dominios revelado por el ataque químico. Por el contrario, la imagen SNOM muestra un alto contraste óptico con una periodicidad $\sim 5.2 \mu\text{m}$. Este diferente comportamiento se resalta con claridad al comparar los perfiles de SNOM y AFM (figuras 5.8c y 5.8d respectivamente) obtenidos a lo largo de las líneas dibujadas en las figuras 5.8a y 5.8b. Es de destacar que la modulación del contraste óptico normalizado de la luz retrodispersada por la muestra $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R$, alcanza un valor cercano al 35%, mientras que el perfil correspondiente a la topografía no presenta ninguna correlación con el perfil de SNOM. Este resultado claramente indica que los cambios observados en la intensidad de luz reflejada no se corresponden con ningún efecto topográfico.

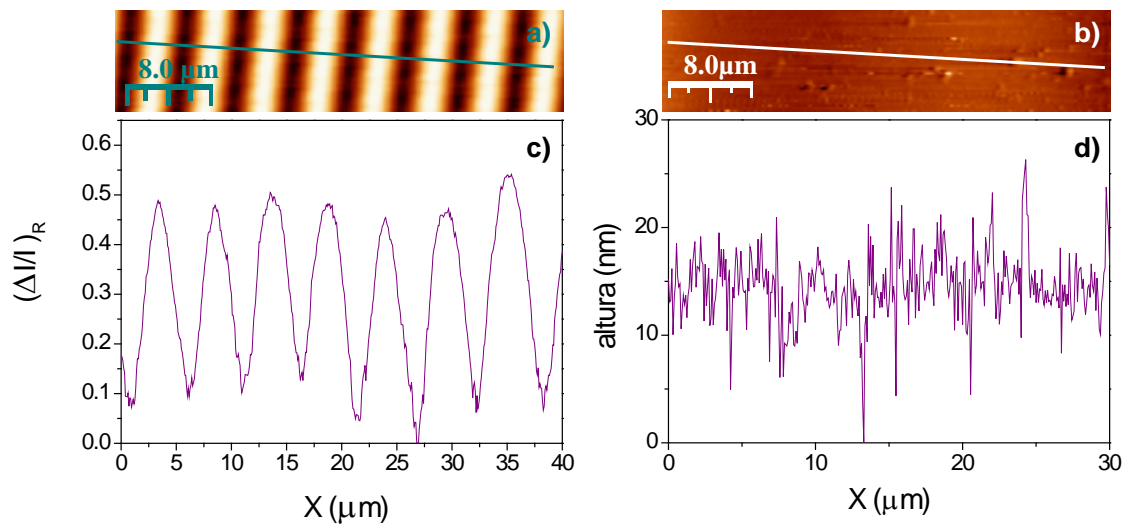


Figura 5.8 a) Imagen de SNOM en reflexión y b) imagen de AFM del cristal de BNN. Las figuras c) y d) corresponden a los perfiles del contraste óptico y altura topográfica, a lo largo de las líneas indicadas en las figuras a) y b) respectivamente

En aproximación de onda plana e incidencia normal, y si despreciamos los efectos de dispersión, la relación entre el contraste óptico en la reflectancia $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R$ y el contraste en el índice de refracción $\left(\frac{\Delta n}{n}\right)$, viene dado por la expresión:

$$\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R = \frac{4n}{n^2 - 1} \times \frac{\Delta n}{n} \quad (5.1)$$

donde si se toma el valor experimental de la modulación del contraste óptico $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R \approx 0.35$ del perfil de la figura 5.8 y el valor del índice de refracción para el BNN, $n = 2.2$, se obtiene que la modulación del índice de refracción es del orden de $\Delta n \sim 0.33$. Este valor resulta más que improbable, sobre todo si se compara con el obtenido anteriormente de los experimentos de difracción ($\Delta n \sim 10^{-4}$). Esta discrepancia hizo necesario buscar un mecanismo alternativo para explicar el contraste óptico detectado, aspecto este que será discutido más adelante una vez presentados todos los resultados de SNOM obtenidos en la muestra de BNN.

ii) Medidas SNOM en el modo transmisión

La figura 5.9a muestra una imagen SNOM en modo transmisión del mismo cristal de BNN, en donde de nuevo se observa una clara modulación en la intensidad de la luz transmitida. La variación del contraste óptico en transmisión $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_T$, a lo largo de la línea dibujada en la imagen de SNOM (Fig. 5.9 b)) presenta una periodicidad del orden de $5.4 \mu\text{m}$, que está de acuerdo con la caracterización morfológica previamente realizada a la muestra. Además, la modulación del contraste óptico que se obtiene de nuevo se acerca a valores en torno al 30%. En este caso no se añade la información correspondiente a la topografía de la superficie de la muestra, pero al igual que en las medidas realizadas en el modo de reflexión, se observó que no existía ninguna relación entre dicha topografía y la respuesta óptica.

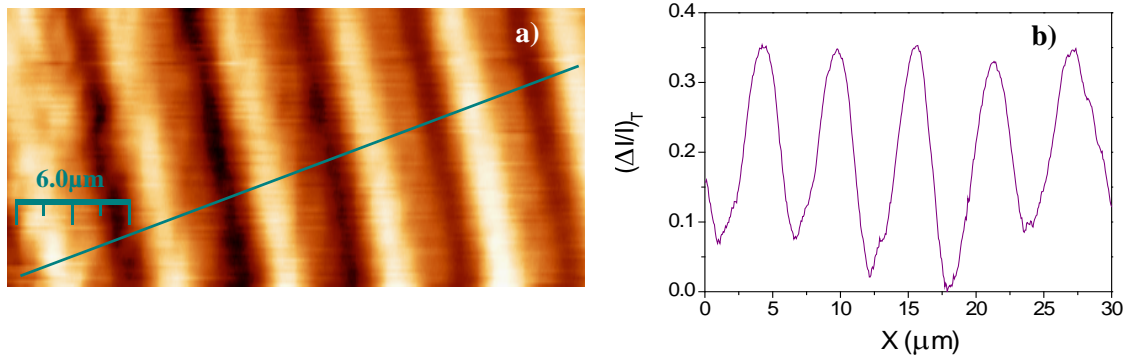


Figura 5.9 a) Imagen de SNOM en transmisión del cristal de BNN:Nd y b) perfil del contraste óptico en transmisión correspondiente a la línea marcada en la imagen de SNOM

Si al igual que en el caso de trabajar en el modo de reflexión, aceptamos una aproximación de onda plana e incidencia normal, la relación entre el contraste óptico en transmisión $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_T$ y el contraste en el índice de refracción $\left(\frac{\Delta n}{n}\right)$ viene dado por:

$$\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_T = -\frac{n-1}{n+1} \times \frac{\Delta n}{n} \quad (5.2)$$

Si se toma el valor experimental del contraste óptico observado en el perfil de la intensidad transmitida de la figura 5.9b, se obtiene que la variación del índice de refracción debería ser $\Delta n \sim 1.76$, resultado claramente descartable.

iii) Medidas SNOM en el modo colección

La figura 5.10a muestra la imagen SNOM tridimensional obtenida mediante el método de colección. Como en los casos anteriores se observa un claro contraste óptico, con una periodicidad de 4.2 μm, algo menor que la encontrada para las configuraciones de reflexión y transmisión. Esta diferencia es debida a que en este último caso se ha analizado una zona del cristal diferente. La figura 5.10b presenta el perfil del contraste óptico en colección $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_C$, en donde es de destacar que en esta configuración se observa una modulación del contraste óptico cercana al 80%. Este valor tan elevado de

$\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_c$ indica claramente, de acuerdo con otros autores (ver por ejemplo [6], [7]), que en las estructuras de dominios ferroeléctricos periódicos la luz sufre un proceso de guiado a través de los dominios ferroeléctricos [8].

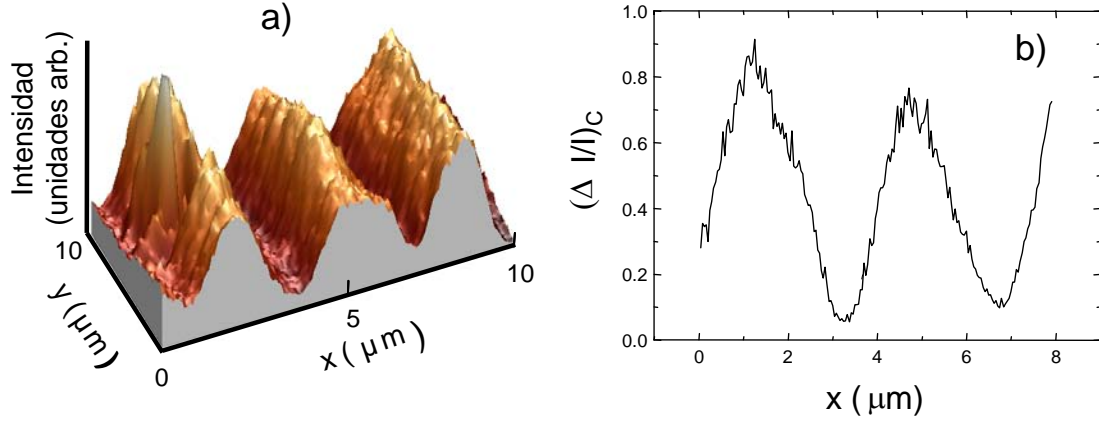


Figura 5.10 a) Imagen de SNOM en tres dimensiones tomada en modo colección del cristal de BNN. b) Perfil correspondiente

iv) Discusión de los resultados de SNOM

Los resultados experimentales antes descritos en las configuraciones de reflexión, transmisión y colección, pueden ser simulados utilizando el modelo BPM descrito en el capítulo 3. Para ello se supone que la presencia de los dominios ferroeléctricos periódicos en el cristal induce en el material una modulación Δn en el índice de refracción. En la realización de los cálculos se supone que esta modulación del índice de refracción obedece a una ley bien sinusoidal o del tipo onda cuadrada, habiéndose comprobado que ambas aproximaciones llevan a resultados similares, siendo los parámetros críticos en la simulación la periodicidad de la red Λ , el valor del índice de refracción de la muestra n (en el caso del BNN, $n \sim 2.2$), y el salto Δn .

La figura 5.11a presenta un esquema de la modulación de índice de refracción inducida por los dominios ferroeléctricos, considerando una dependencia espacial del tipo onda cuadrada y en donde la parte oscura indica el valor de mayor índice de refracción. Es evidente que el esquema responde a una red de guías de onda, donde los valores impuestos en la simulación fueron una periodicidad de $5 \mu\text{m}$ y una variación de

índice del orden de 10^{-4} . En la misma figura 5.11a se ha dibujado el perfil de una fibra óptica que termina en una punta de diámetro 100 nm. Esta punta óptica en el modo SNOM de transmisión es utilizada como fuente de luz, mientras que en la configuración de colección opera como elemento receptor, según lo expuesto en el capítulo 5. Así, ambos casos reproducen las condiciones experimentales de las medidas SNOM presentadas en esta memoria.

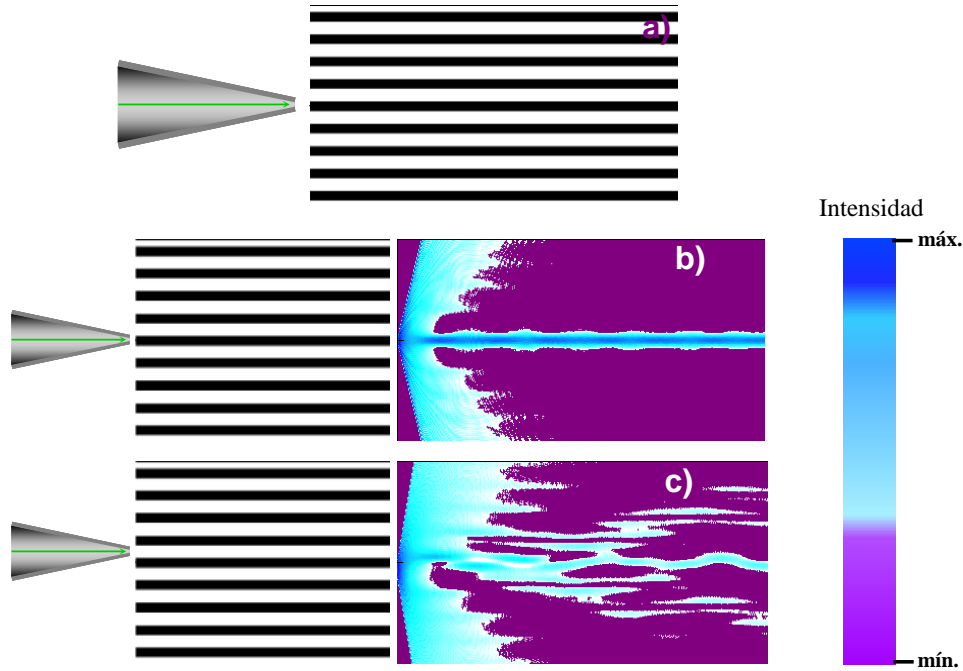


Figura 5.11 a) Resultados de la simulación BPM de la estructura de dominios ferroeléctricos en la muestra de BNN:Nd. b) y c) Simulación de la configuración de SNOM en transmisión para el caso de acoplar luz a las regiones de mayor y menor índice respectivamente

En la configuración de SNOM en transmisión, la luz transmitida a lo largo de la muestra (longitud de onda $\lambda \sim 532$ nm), se recoge en la cara opuesta simulando un objetivo de apertura 15° . La figura 5.11b ilustra cómo es la propagación de la luz a lo largo de la estructura en el modo SNOM de transmisión cuando la punta óptica se encuentra ubicada sobre un valor máximo del índice de refracción. Puede verse cómo la luz se confina dentro de la muestra a lo largo de la región de alto valor del índice de refracción, siendo guiada hacia la cara opuesta. La figura 5.11c reproduce la situación cuando la punta óptica está situada en una posición que corresponde a un valor mínimo del índice de refracción. Ahora se observa que la intensidad de luz que llega al extremo de la muestra es menor, involucrando a diferencia del caso anterior, diferentes canales

ópticos. En el caso de querer simular las medidas de SNOM en el modo colección, la muestra se ilumina con un haz gaussiano de 50 μm de anchura, que incide paralelamente a los dominios jugando ahora la punta óptica el papel de colector de la intensidad transmitida en campo cercano, al encontrarse a una distancia de aproximadamente 20 nm de la superficie de la muestra. En ambos casos desplazando la punta óptica a lo largo de la dirección perpendicular a la modulación de índice de refracción, se puede obtener un perfil de la intensidad transmitida o colectada a través de la muestra.

En la figura 5.12 se comparan los valores teóricos (línea discontinua roja) y experimentales (línea continua negra) obtenidos en la configuración SNOM por colección de $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_c$ en función de la posición de la punta óptica. El mejor ajuste se obtuvo para un valor de $\Delta n = 1.5 \cdot 10^{-4}$ que está en buen acuerdo con el calculado a partir de las medidas de difracción ($\Delta n \sim 10^{-4}$). Es interesante destacar que aunque se ha supuesto una modulación del índice de refracción del tipo onda cuadrada el resultado en la modulación en la luz colectada responde a una ley coseno de acuerdo también con el perfil observado experimentalmente.

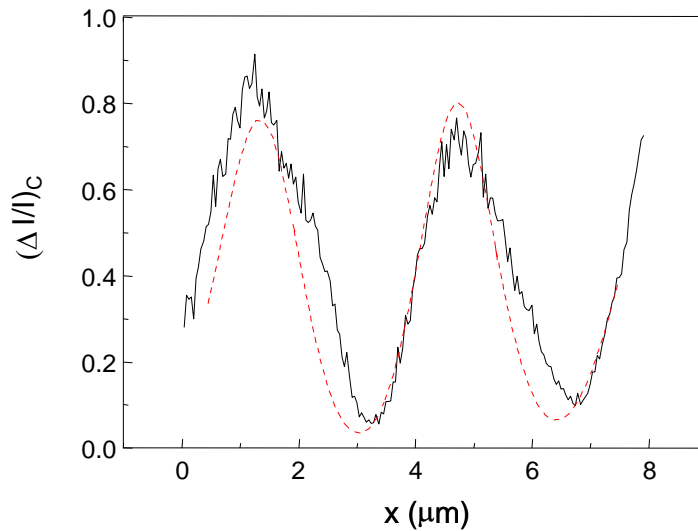


Figura 5.12 Perfil de SNOM en modo colección del cristal de BNN (línea continua) y el resultado de la simulación BPM (línea discontinua)

El buen ajuste con los datos teóricos, confirma que los altos valores de contraste óptico obtenidos experimentalmente mediante la técnica SNOM pueden ser explicados mediante un efecto de guía de onda, debido a la modulación del índice de refracción que existe como consecuencia de la presencia de dominios ferroeléctricos periódicos en la muestra de BNN:Nd. El modelo BPM ajusta también de forma aceptable los resultados obtenidos para los perfiles de intensidad en el modo SNOM de transmisión. El menor valor detectado del contraste óptico en esta configuración tiene su origen en la muy diferente forma de iluminar la muestra: onda plana en el caso de las medidas de SNOM en colección, frente a una iluminación que diverge de la punta óptica de apertura 100 nm cuando se utiliza el modo SNOM de transmisión.

Aunque en el presente trabajo no se han realizado cálculos para el ajuste de los datos experimentales obtenidos en la configuración de SNOM en reflexión, sí que se discutirá brevemente el inesperado alto valor del contraste óptico encontrado en esta configuración. Radko et al [9], observaron al estudiar la distribución de índice de refracción en la superficie de una fibra óptica en campo cercano, que la medida se veía fuertemente afectada por la reflexión que tenía lugar en la parte final de la fibra como consecuencia de la diferencia de índice de refracción entre la misma fibra ($n \sim 1.48$) y el aire ($n = 1$). Incluso los autores se vieron en la necesidad de introducir la fibra en agua ($n = 1.33$) para minimizar la diferencia de índice de refracción y evitar dicha reflexión, utilizando un esquema similar al presentado en la figura 5.13. En el caso estudiado del BNN, este fenómeno es mucho más crítico dado el alto valor del índice de refracción para el cristal de BNN ($n \sim 2.2$) en comparación con el del aire ($n = 1$). Si se supone que la estructura de dominios ferroeléctricos actúa como una guía de onda, la luz que atraviese la muestra sufrirá una reflexión en la cara opuesta del cristal volviendo hasta el mismo punto de la cara iluminada de la muestra por efecto del confinamiento óptico, siendo este efecto el que permite explicar el alto contraste óptico medido experimentalmente en la configuración de reflexión $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R \approx 0.35$.

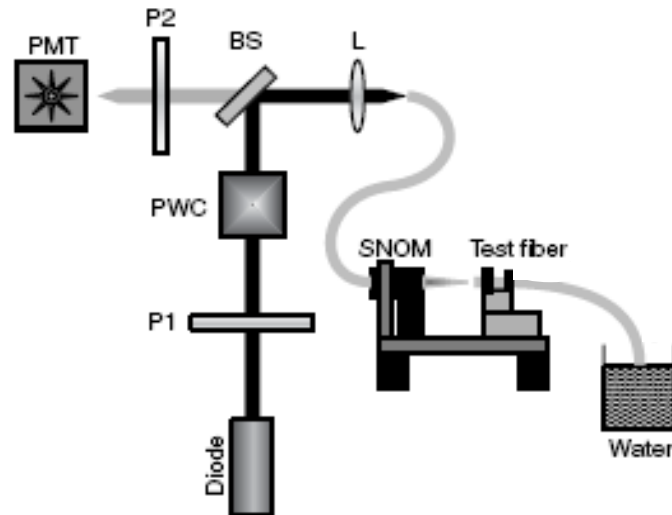


Figura 5.13 Esquema experimental del montaje utilizado por Radko et al [9], para medir la distribución de índice de refracción en la superficie de una fibra óptica

Nos planteamos ahora discutir los posibles efectos o causas responsables de la aparición de una variación del índice de refracción, la cual debe estar relacionada con la presencias de dominios ferroeléctricos en la muestra. Dos mecanismos diferentes son hoy día sugeridos en la literatura sobre este tema. Uno afirma que las variaciones en el índice de refracción son debidas a la diferente dirección de polarización de los dominios ferroeléctricos, mientras que el segundo mecanismo asocia a las distorsiones de la red alrededor de las fronteras de los dominios, la aparición de la modulación en el índice de refracción. Así Bermúdez et al [10] sugieren, para explicar los patrones de difracción encontrados en muestras dopadas de LiNbO_3 con dominios ferroeléctricos periódicos así como los contrastes obtenidos mediante microscopía de fuerzas, que existe una variación de la constante dieléctrica y por tanto del índice de refracción entre un dominio y los adyacentes. Desgraciadamente no llegan a especificar a que dominio corresponde un valor mayor del índice de refracción. Sin embargo aceptando que el máximo de la modulación del índice de refracción se encuentra en los dominios positivos, dicha modulación quedaría respecto a la posición de los dominios ferroeléctricos como se representa en la figura 5.14. Recientemente Lu et al [11] llegaron a una conclusión semejante al realizar medidas de campo cercano en la región de microondas en muestras de LiNbO_3 periódicamente polarizado. En este caso los autores fueron capaces de medir tanto la posición de las fronteras (determinando una periodicidad de $3.5 \mu\text{m}$), como la variación de la constante dieléctrica, en la que

obtuvieron una periodicidad de $7\ \mu\text{m}$ que claramente coincidía con la periodicidad de los dominios y no de las fronteras. Aceptando esta hipótesis, en el caso del BNN se obtendría una modulación del índice de refracción como se indica en la figura 5.13, en donde se ha supuesto un salto brusco del valor de índice de refracción entre los dominios. Esta situación produce para la muestra de BNN, una periodicidad en la modulación del índice de refracción de $\sim 5\ \mu\text{m}$, que coincide con la periodicidad medida experimentalmente.

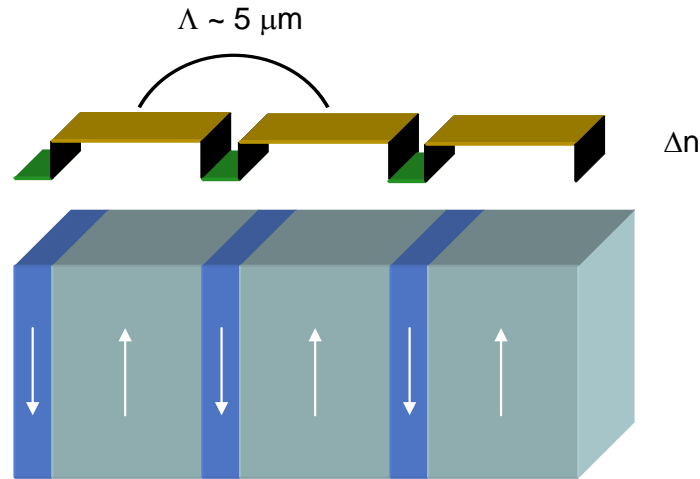


Figura 5.14 Representación de la modulación de índice en la muestra de BNN, aceptando la explicación dada por Bermúdez et al

Por otro lado Gopalan et al [6] observaron en cristales congruentes de LiNbO_3 , al realizar medidas SNOM en el modo colección, un fuerte contraste óptico alrededor de las fronteras de los dominios ferroeléctricos que presentaba un decaimiento a medida que la punta óptica se alejaba de la frontera del dominio. El alto contraste óptico medido alrededor de las fronteras de los dominios fue asociado por estos autores a una variación del índice de refracción debido a la distinta estructura de los defectos intrínsecos, denominados antisitios (iones Nb^{3+} en posiciones de vacantes de Li^+), a un lado u otro de la frontera. La figura 5.15 obtenida de la referencia [6] ilustra esta situación, en donde puede verse cómo el efecto de la frontera sobre el valor del índice de refracción se extiende varias micras.

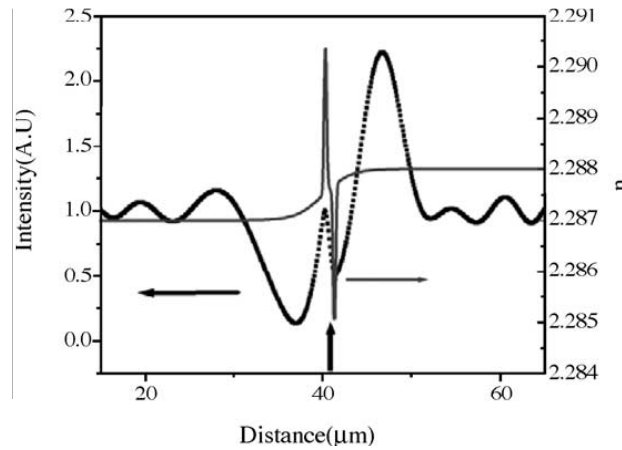


Figura 5.15 Perfil de índice y propagación de luz a través de una frontera de dominio en un cristal de LiNbO_3 . Figura obtenida de la referencia [6]

Si trasladamos la idea de Gopalan et al al caso del BNN, nos encontramos ante la situación ilustrada en la figura 5.16, en la que la disminución del valor del índice de refracción en función de la distancia a las barreras de los dominios se ha considerado lineal por comodidad. Vemos que en los dominios de menor tamaño, la variación neta del índice de refracción por el efecto frontera es menor que en aquellos dominios de mayor tamaño (línea discontinua de la figura 5.16). En conjunto, en la muestra de BNN con dominios periódicos, lo que se produce es una modulación del valor del índice de refracción, que si se desprecia el doble pico sobre el dominio de menor tamaño, se obtiene en definitiva una periodicidad de $5 \mu\text{m}$ igual a la observada experimentalmente e igual también a la que se obtendría aceptando que las variaciones del índice de refracción están asociadas a la diferente dirección en la polarización de los dominios.

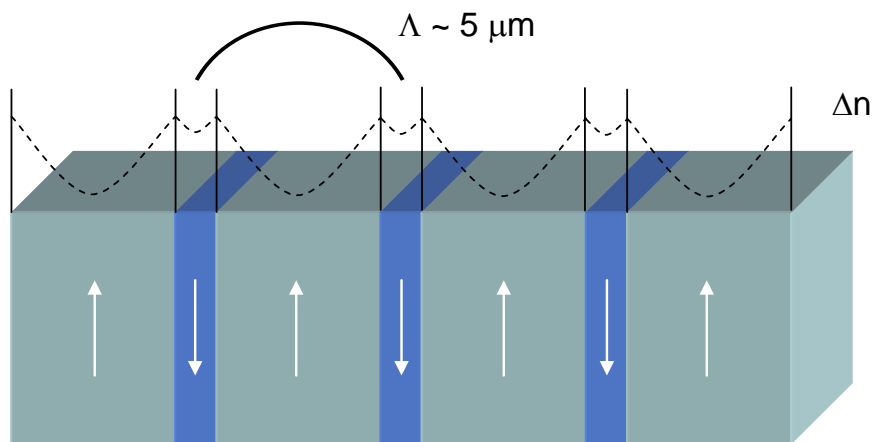


Figura 5.16 Esquema de la variación de índice de refracción con el tamaño de los dominios, aceptando el modelo propuesto por Gopalan et al

Por tanto, ambos modelos llevan a la misma periodicidad en la modulación del índice de refracción, de forma que de las medidas experimentales realizadas con el SNOM en la muestra de BNN no se puede en principio discriminar entre ambos modelos. Sin embargo el efecto frontera podría llevar implícito una dependencia de la intensidad de la modulación con el tamaño de los dominios. Como se ha ilustrado en la figura 5.16, en los dominios de menor tamaño se producen cambios menores del índice de refracción, con relación a los valores que se alcanzan en los dominios de mayor tamaño. Como se ha comentado al principio de este capítulo, en las muestras de BNN se observó una pequeña variación en el tamaño de los dominios de aproximadamente un 10%, que permite explorar esta posibilidad. La figura 5.17 muestra la dependencia del contraste óptico obtenida con el modo SNOM de transmisión, en función de la periodicidad medida a partir de los perfiles de intensidad SNOM. Se observa que para periodicidades de $4.2 \mu\text{m}$, el contraste óptico es de tan solo un 7%, mientras que para periodicidades de $5.6 \mu\text{m}$ éste alcanza un valor de 35% [12].

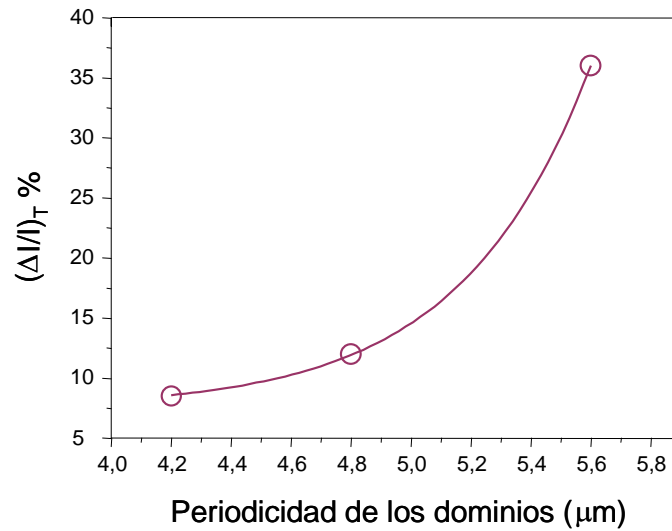


Figura 5.17 Variación del contraste en la transmisión óptica con la periodicidad de los dominios encontrada en diferentes puntos de la muestra de BNN

Por otro lado, se encontró, como se muestra en la figura 5.18, que al simular el valor del contraste óptico que se obtiene mediante el modelo BPM, suponiendo que la variación del índice de refracción es constante y considerando solamente un cambio en el tamaño de los dominios, que los cambios en el contraste óptico eran tan sólo de aproximadamente un 2%.

Figura 5.18 Simulación BPM de la dependencia del contraste en la transmisión óptica con la periodicidad de los dominios

Este segundo supuesto, que obedecería al modelo de cambio de índice de refracción debido a la diferente dirección de la polarización de los dominios, produce variaciones en el contraste óptico mucho menores a los cambios obtenidos experimentalmente. Concluimos por tanto, que la fuerte dependencia del contraste óptico con el tamaño de los dominios, sugiere que en los cristales dopados de BNN con dominios ferroeléctricos periódicos, el mecanismo del cambio del índice de refracción debido a las fronteras de los dominios es el más efectivo.

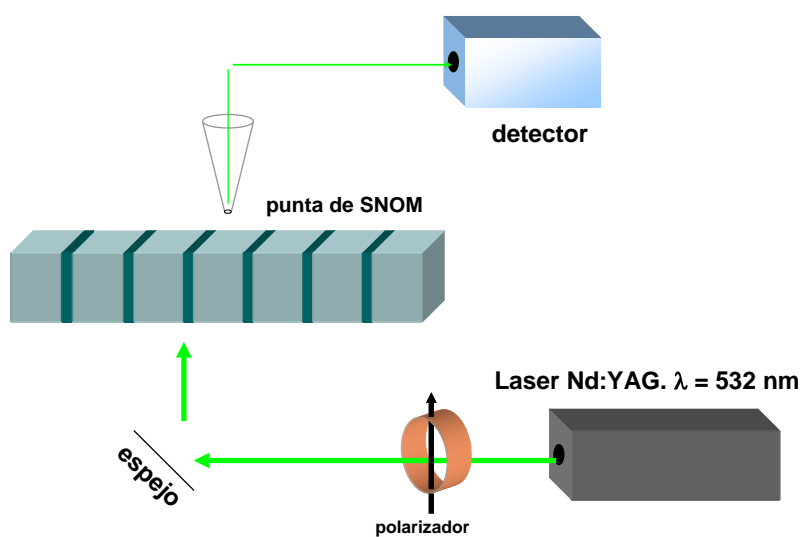


Figura 5.19 Esquema del experimento de polarización realizado

El efecto de confinamiento de luz debido a la modulación de índice de refracción, inducida en la muestra de BNN como consecuencia de la presencia de dominios ferroeléctricos periódicos, se observó que dependía muy fuertemente de la dirección de polarización de la luz. La figura 5.19 muestra el esquema utilizado para la realización de este estudio. La variación del contraste óptico $(\Delta I/I)_c$ y de la intensidad de la luz colectada I_c observadas utilizando el modo SNOM en colección en función del ángulo de polarización se presenta en la figura 5.20. En ésta puede verse, que mientras el valor de I_c presenta una dependencia tipo coseno con mínimos a 130° y 320° , el valor del contraste óptico $(\Delta I/I)_c$ es prácticamente constante alrededor del 80% (de acuerdo con los resultados presentados en la figura 5.12), salvo en los mínimos antes señalados, en donde el contraste óptico se anula. Este efecto es consistente con el hecho de que en el BNN el coeficiente electroóptico r_{33} es un factor tres veces superior al r_{13} [13] y por tanto los cambios en el valor del índice de refracción serán mas acusados en la dirección correspondiente al eje extraordinario y mínimos en la dirección del eje ordinario. De hecho se comprobó, que en la configuración utilizada, los ángulos en los cuales aparecen los mínimos de $(\Delta I/I)_c$ coincidían precisamente con la dirección correspondiente al eje ordinario.

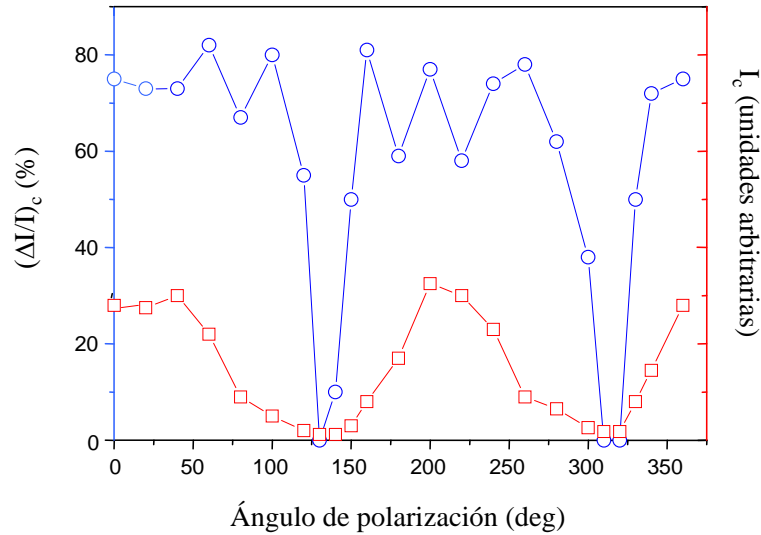


Figura 5.20 Contraste óptico (azul) e intensidad de luz colectada (rojo) en función del ángulo de polarización

Finalmente comentar, que en los cristales dopados de BNN con dominios ferroeléctricos periódicos, aparecen a lo largo del eje c estructuras de dominios diferentes a los estudiados anteriormente, denominados “*micro-twins*” y que han sido observados mediante técnicas de ataque químico. Es de esperar que estas estructuras presenten igualmente variaciones del índice de refracción y por tanto puedan ser observadas mediante la técnica de SNOM. La figura 5.21 muestra una imagen 3D tomada en el modo de SNOM en reflexión, donde los “*micro-twins*” son claramente visualizados. Estas estructuras desaparecieron después que la muestra fuera sometida a un tratamiento de recocido a 250° bajo presiones de $\sim 6.9 \cdot 10^6$ Pa [1].

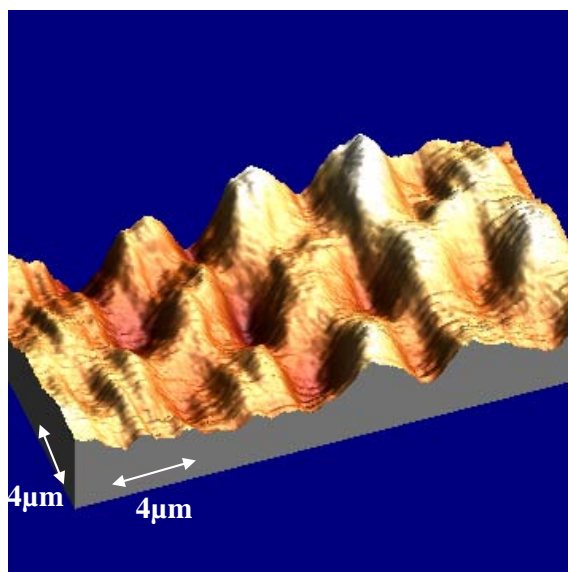


Figura 5.21 Imagen SNOM tridimensional en modo reflexión, que muestra la estructura de “*micro-twins*” en el cristal de BNN periódicamente polarizado.

5.1-2 El niobato de litio impurificado con erbio e iterbio

En esta parte del trabajo se presenta un estudio SNOM sobre los dominios ferroeléctricos periódicos creados durante el proceso de crecimiento del LiNbO_3 impurificado con iones de tierras raras (Er, Yb). La razón, como en el caso anterior del cristal de BNN, de introducir iones de tierras raras durante el crecimiento es doble. En primer lugar, porque es generalmente aceptado que así se estimula la formación de dominios periódicos [14], y en segundo lugar porque los iones de tierras raras son

ópticamente activos y por tanto útiles en aplicaciones en optoelectrónica cuando se encuentran disueltos en una matriz con dominios ferroeléctricos periódicos [15].

Dado que en el LN únicamente están permitidas dos orientaciones para los dominios ferroeléctricos, a saber paralelos y antiparalelos a lo largo del eje ferroeléctrico (eje z) y que la muestra utilizada en este estudio se creció a lo largo del eje x mediante el método denominado “off-centered” Czochralski, la estructura de dominios ferroeléctricos obtenida, obedece al esquema representado en la figura 5.22.

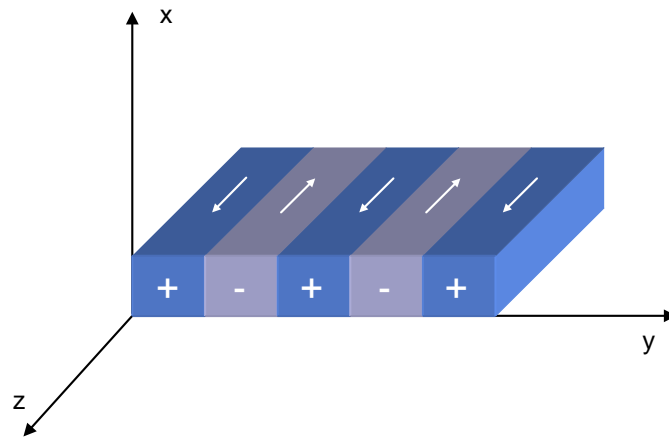


Figura 5.22 Representación esquemática de la distribución de dominios ferroeléctricos en el cristal de LN:Er:Yb

5.1-2.1 Caracterización morfológica de las estructuras

Para verificar la formación de dominios ferroeléctricos, se introdujo la muestra de LN:Er:Yb en una disolución de HF:HNO₃ 1:2 en volumen a temperatura ambiente durante 24 horas. El ataque químico puso de manifiesto una estructura de dominios ferroeléctricos a lo largo del eje z , los cuales fueron caracterizados mediante microscopia óptica convencional, AFM y SEM (ver figura 5.23).

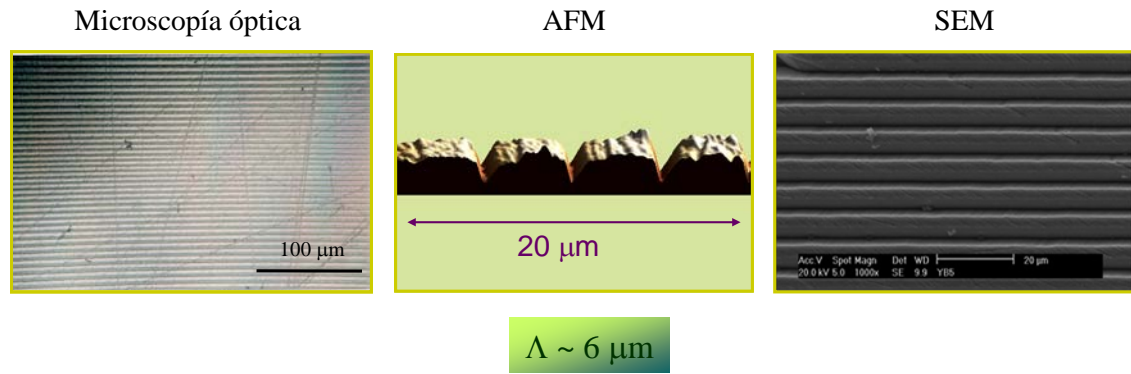


Figura 5.23 Resultados de la caracterización superficial de la estructura de dominios ferroeléctricos presente en el cristal de LN:Er:Yb, mediante microscopía óptica, AFM y SEM

Merece la pena mencionar de nuevo, que la periodicidad de los dominios ferroeléctricos a lo largo de toda la superficie del cristal, variaba desde las 5 μm hasta las 60 μm aproximadamente, de modo que lo correcto en este caso es hablar de una muestra con dominios ferroeléctricos aperiódicos. Cantelar et al [16] consideraron que la principal variable que afectó a esta aperiodicidad, fue la variación en la concentración total de impurezas existentes en el fundido a lo largo del crecimiento. Igualmente los estudios topográficos pusieron de manifiesto que los tamaños de los dominios ferroeléctricos positivos (zonas no atacadas) y negativos eran diferentes como puede apreciarse en las imágenes de AFM o SEM de la figura 5.23, aumentando esta diferencia de tamaño a medida que lo hacía la periodicidad de los dominios ferroeléctricos.

Otra observación destacable, que se pone de manifiesto en la figura 5.24, es que los patrones de los dominios ferroeléctricos no son simétricos en ambas caras del cristal, lo que significa que los dominios no crecen paralelos a lo largo del eje z durante el proceso de crecimiento.

Figura 5.24 Imágenes de microscopía óptica de la muestra de LN:Er:Yb previamente sometida al ataque químico diferencial. a) cara positiva del cristal y b) cara negativa

Ya que los dominios ferroeléctricos periódicos juegan el papel de una red de guías de onda, como se mostró en el caso del cristal de BNN, el hecho de que los dominios no crezcan perpendicularmente a las caras plano paralelas de la muestra objeto de estudio, hace que el posible efecto de confinamiento de la luz parta de una zona en la cara iluminada y alcance la cara opuesta en una región desplazada con respecto al área de inyección. Este comportamiento se representa de manera esquemática en la figura 5.25.

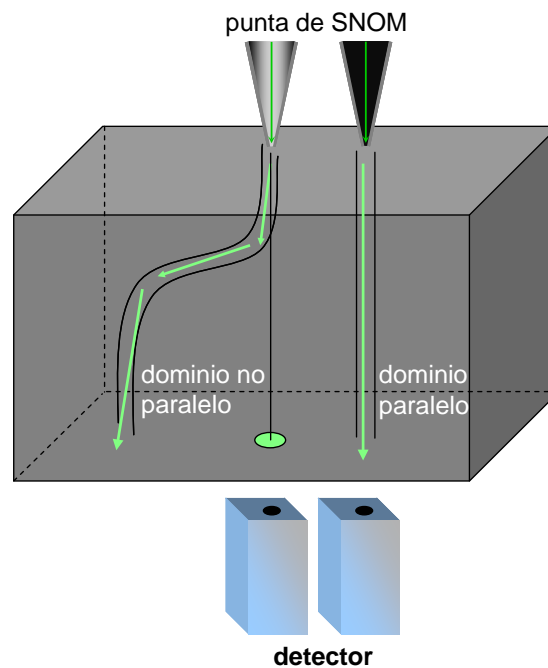


Figura 5.25 Diferencia en la observación entre un dominio paralelo, como los estudiados en la muestra de BNN y un dominio no paralelo como los existentes en la muestra de LN:Er:Yb

Este crecimiento anómalo de los dominios, impidió realizar medidas precisas de SNOM en los modos de transmisión y colección, ya que al trabajar con la fuente de luz y el detector alineados no se podía asegurar que la zona del cristal iluminada se correspondiera con la señal detectada.

5.1-2.2 Medidas SNOM

Debido a la limitación anteriormente expuesta únicamente se realizó el estudio de SNOM en el modo reflexión, en donde la zona del cristal iluminada es la misma que refleja o retrodispersa la luz. Previamente a la caracterización por medio del SNOM, la muestra fue pulida hasta grado óptico asegurando la desaparición total de los surcos producidos por la erosión química.

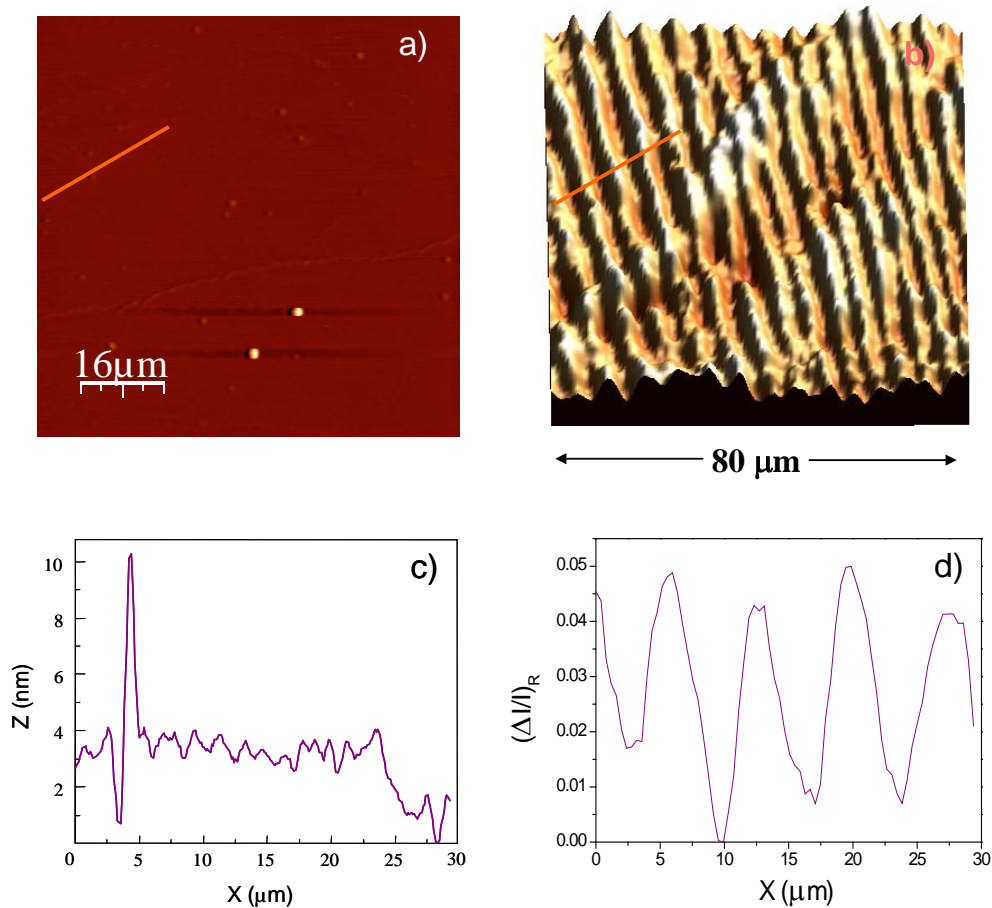


Figura 5.26 a) Imagen de AFM del cristal de BNN y b) imagen tridimensional de SNOM en reflexión. Las figuras c) y d) corresponden a los perfiles de la altura topográfica y del contraste óptico a lo largo de las líneas naranjas indicadas en las figuras a) y b) respectivamente

La figura 5.26a presenta una imagen de AFM la cual ha sido obtenida simultáneamente con la respuesta SNOM en el modo reflexión (figura 5.26b). Los perfiles topográficos y del contraste óptico normalizado de la intensidad de luz retrodispersada a lo largo de las líneas marcadas en ambas imágenes, se presentan en las figuras 5.26c y 5.26d respectivamente. La imagen SNOM presenta un contraste óptico cuya modulación alcanza un valor próximo al 5%, exhibiendo una periodicidad de aproximadamente $6.5 \mu\text{m}$, mientras que el perfil topográfico muestra una rugosidad de $\pm 2 \text{ nm}$ sin apariencia alguna de una estructura definida. En consecuencia y como en el caso del BNN, los cambios observados en el contraste óptico SNOM no pueden ser atribuidos a la topografía de la muestra.

Cómo se comentó anteriormente, en el LN:Er:Yb la periodicidad de los dominios ferroeléctricos variaba considerablemente a lo largo de la muestra, observándose periodicidades desde las 5 hasta las $60 \mu\text{m}$. La figura 5.27 muestra la imagen de SNOM obtenida operando en el modo de reflexión para una zona de la muestra de LN:Er:Yb en la cual los dominios ferroeléctricos presentaban una periodicidad de $\sim 15 \mu\text{m}$. La figura 5.27b representa el perfil del contraste óptico a lo largo de la línea marcada en la imagen de SNOM, en donde es destacable que la modulación de dicho contraste alcanza un valor aproximado del 10%, que es el doble que el obtenido para dominios con una periodicidad de $6 \mu\text{m}$.

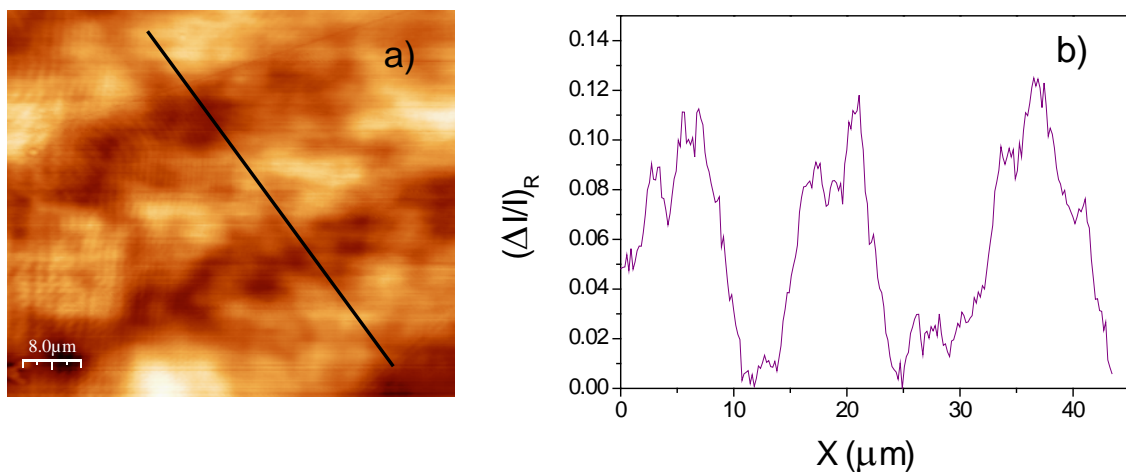


Figura 5.27 a) Imagen de SNOM en reflexión del cristal de LN:Er:Yb y b) perfil del contraste óptico en reflexión correspondiente a la línea marcada en la imagen de SNOM, donde se observa una periodicidad de $\sim 15 \mu\text{m}$

Finalmente la figura 5.28 muestra una imagen tridimensional de SNOM correspondiente a una zona de la muestra en donde, a partir de las medidas ópticas realizadas tras el ataque químico, era de esperar encontrar dominios de gran tamaño. La periodicidad en este caso es del orden de las $32\ \mu\text{m}$ y como puede verse en el perfil del contraste óptico normalizado, la modulación de éste alcanza valores próximos al 40%, claramente superiores a los detectados en áreas del cristal con periodicidades menores. Esta variación registrada en el contraste óptico como consecuencia del cambio en la periodicidad o tamaño de los dominios será comentada más adelante.

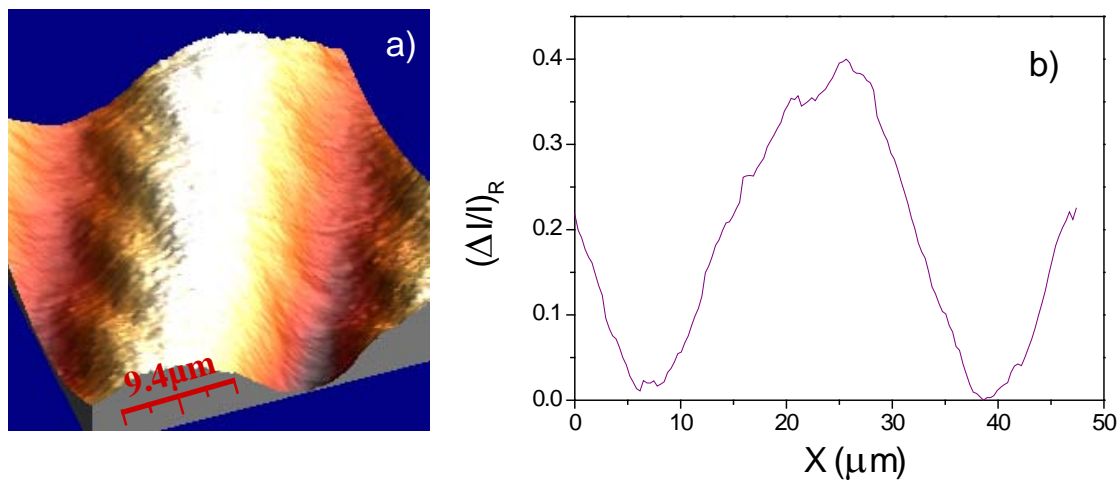


Figura 5.28 Imagen de SNOM tridimensional de la muestra de LN:Er:Yb y su perfil asociado, correspondientes a dominios ferroeléctricos con periodicidades de $32\ \mu\text{m}$

Una inspección más cuidadosa de la figura 5.28, revela la presencia de una estructura adicional localizada en las laderas del dominio que podría estar relacionada con la formación de estrías durante el proceso de crecimiento [17]. Aunque este tema no es objeto del presente trabajo, pone de manifiesto la potenciabilidad de la técnica SNOM en el estudio de las estructuras de los dominios ferroeléctricos.

5.1-2.3 Discusión de los resultados SNOM

Como en el caso del BNN si se acepta incidencia normal y se desprecian los efectos dispersivos, la modulación Δn del índice de refracción inducido por la presencia de los dominios ferroeléctricos, teniendo en cuenta que $(\Delta I/I)_R \sim 5\%$ para periodicidades de $5 \mu\text{m}$ y $n = 2.3$, es de $\Delta n \sim 4 \cdot 10^{-2}$ (ver ecuación 5.1). Análogamente al estudio realizado sobre la muestra de BNN, la variación del índice de refracción puede ser estimada a partir de los datos obtenidos en experimentos de difracción. La figura 5.29 presenta en el recuadro el patrón de difracción registrado en campo lejano usando una láser de He-Ne ($\lambda = 633 \text{ nm}$) en incidencia normal, en la misma zona en la que se obtuvo la imagen SNOM representada en la figura 5.26. La observación de un nítido patrón de difracción es una clara evidencia de la formación durante el proceso de crecimiento de una modulación en el índice de refracción.

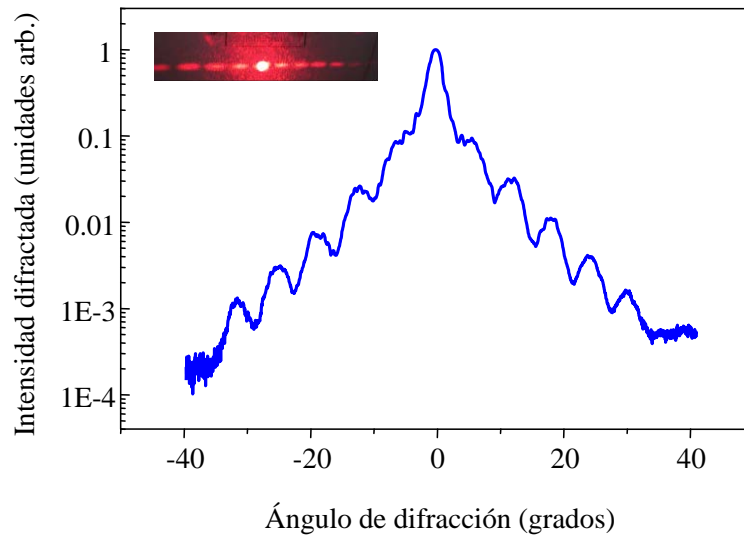


Figura 5.29 Intensidad de luz difractada en función del ángulo de difracción en la muestra de LN:Er:Yb, usando una λ de 633 nm en incidencia normal. En el recuadro de la figura se muestra el patrón de difracción obtenido

El patrón de difracción consiste en “spots” igualmente espaciados con una separación angular de $\sim 6^\circ$ que corresponde, para una longitud de onda de 633 nm, a un periodo de la red de difracción de $\sim 6 \mu\text{m}$ en muy buen acuerdo con los valores obtenidos de la periodicidad en los perfiles SNOM. En la figura 5.29 se representa en

escala semilogarítmica la intensidad de difracción bajo incidencia normal a lo largo de la dirección paralela a los dominios ferroeléctricos.

Al realizar el ajuste teórico mediante el método BPM se concluyó que la profundidad de los dominios dentro de la muestra era de tan solo unas pocas micras, resultado esperable si tenemos en cuenta que como se comentó al principio de esta sección, en las muestras de LN:Er:Yb los dominios no crecen perpendicularmente a las caras del cristal. Se tiene por tanto una situación lejana a un régimen de difracción Bragg y más cercana a un escenario de dominios superficiales que responde al régimen Raman-Nath. Por medio del modelo BPM y aceptando que la difracción obedece al régimen Raman-Nath, los datos experimentales se ajustaron razonablemente para un valor de $\Delta n \sim 10^{-4}$ [4], dos ordenes de magnitud inferior al obtenido considerando un simple mecanismos de reflexión. Sin embargo, este valor es del mismo orden del encontrado para el caso de la muestra de BNN y también en experimentos previos en muestras de LiNbO_3 [18]. La razón por la cual se obtiene contrastes ópticos tan elevados en la configuración de SNOM en reflexión, fue discutida en la sección anterior considerando las reflexiones que tienen lugar al final de un dominio debido al salto en el índice de refracción entre, en este caso, la muestra de LN ($n \sim 2.3$) y el aire ($n = 1$).

Los resultados experimentales obtenidos en la muestra de LN:Er:Yb confirman la conclusión elaborada tras el estudio SNOM en BNN, de que la presencia de dominios ferroeléctricos en muestras impurificadas, induce una modulación en el índice de refracción que hace que el material se comporte como una red de guías de onda.

Finalmente la figura 5.30 muestra la variación del contraste óptico $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R$ en función de la periodicidad, en donde como ya ocurrió en la muestra de BNN (figura 5.17), se puede apreciar que existe una fuerte dependencia del valor de $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R$ con la periodicidad de las estructuras de dominio.

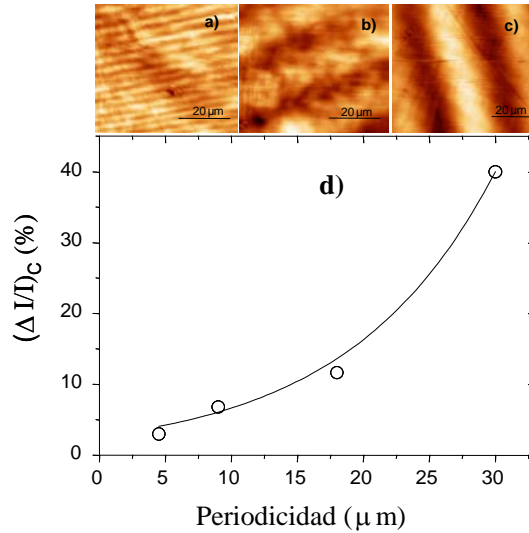


Figura 5.30 Imágenes de SNOM en reflexión del cristal de LN:Er:Yb para tres zonas distintas que presentaban dominios ferroeléctricos con diferente periodicidad a) ~ 5 μm, b) ~ 15 μm y c) ~ 30 μm. d) Variaciones del contraste óptico en reflectancia con el periodo de los dominios

Cómo se ilustró en la figura 5.18 el contraste óptico en un dispositivo de guías de onda, suponiendo que la variación del índice de refracción es constante y considerando tan sólo un cambio en el tamaño de los dominios, no debería variar apenas. Por lo tanto el resultado obtenido en la muestra de LN:Er:Yb (figura 5.30) apoya la hipótesis de que en cristales ferroeléctricos con dominios periódicos, la modulación creada en el índice de refracción esta asociada a cambios estructurales alrededor de las barreras de dominio cómo propusieron Gopalan et al [6].

5.1-3 Medidas SNOM en redes holográficas grabadas en LiNbO₃:Fe

Se presenta en esta sección un estudio SNOM sobre el confinamiento óptico en estructuras periódicas fabricadas en cristales congruentes de LiNbO₃ impurificados con iones Fe mediante el efecto fotorrefractivo.

El proceso por el que se genera el efecto fotorrefractivo en LN:Fe, es bien conocido [19] y su mecanismo físico para el caso que nos ocupa, puede ser esencialmente interpretado (haciendo uso del modelo en etapas de Kukhtarev [20]) a partir de una iluminación de intensidad espacialmente variable obtenida mediante la

interferencia de haces coherentes. Dicho modelo presupone la fotoionización a partir de donadores Fe^{2+} , que da lugar a una elevada densidad de electrones en zonas de máxima intensidad $I(x)$. La siguiente etapa es la difusión y posterior recombinación en trampas de Fe^{3+} en las “zonas oscuras”. Como consecuencia de este hecho se genera una separación espacial de cargas entre la zona de atrapamiento (-) y la zona de máxima intensidad (+ tras la difusión de los electrones). Dicha separación de cargas da lugar a una distribución espacial del campo eléctrico $E(x)$ que es la que finalmente genera la variación del índice de refracción, la cual responde a la forma conocida como efecto Pockels:

$$\Delta n = -\frac{1}{2} n^3 \gamma_{\text{lm}} E(x) \quad (5.3)$$

donde γ_{lm} es la constante de acoplo fotorrefractivo.

El proceso de grabado se llevó a cabo por el método de mezcla de dos ondas a partir de un mismo haz láser de Ar^+ , seleccionando la línea 514,5 nm según se indica en la figura 5.31a. La iluminación se mantuvo durante aproximadamente 20 minutos a temperatura ambiente, tras lo cual y mediante microscopia óptica diferencial, se observó el patrón de franjas producido (figura 5.31b) perpendicular al eje óptico c. En las condiciones geométricas utilizadas el patrón de interferencias obtenido presentó una periodicidad de 2.4 μm . Posteriormente a la grabación de las franjas, se llevó a cabo una lectura de la potencia transmitida y difractada utilizando como haz de prueba la línea de 632,8 nm de un láser de He-Ne en condición de Bragg, obteniéndose potencias de 72 μW para el haz transmitido y de 43 μW para el difractado. De estos valores se dedujo una eficiencia de difracción en torno a un 38%. Usando la expresión simplificada de Kogelnik (suponiendo ausencia de absorción) [21] se obtuvo una primera estimación de la variación de la modulación del índice de refracción en torno a $7 \cdot 10^{-5}$.

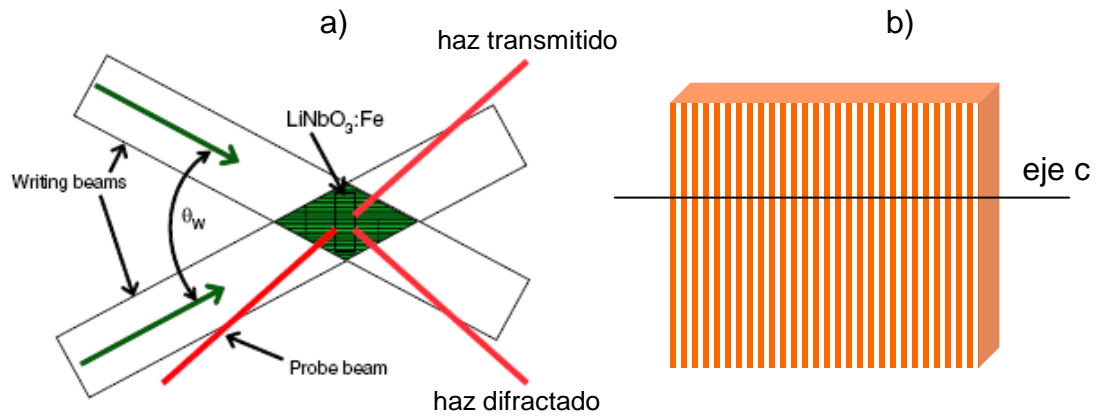


Figura 5.31 a) Esquema del proceso de grabado del patrón de franjas (figura obtenida de la referencia [19]); b) representación del patrón de franjas

Una vez creada la red de difracción fotorefractiva se realizaron las medidas SNOM en la configuración de colección. La figura 5.32 muestra la imagen obtenida en el modo SNOM de colección y el perfil del contraste óptico a lo largo de la línea marcada en dicha imagen para el caso en que el vector polarización es paralelo al eje óptico c.

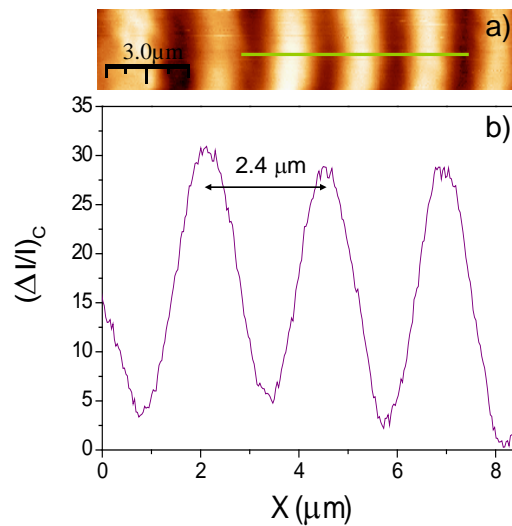


Figura 5.32 a) Imagen SNOM del patrón de franjas en la muestra de LN:Fe en polarización paralela al eje c; b) perfil de la variación del contraste óptico en transmisión a lo largo de la línea verde dibujada en a)

La imagen SNOM presenta un claro contraste óptico que indica la existencia de un confinamiento de la luz a lo largo de la muestra. El perfil del contraste óptico evidencia una periodicidad de 2.4 μm, que coincide con el valor medido por difracción.

De dicho perfil se deduce un valor para la modulación del contraste óptico en transmisión de $(\Delta I/I)_T \sim 25 \%$, algo inferior al observado en las muestras de BNN utilizando esta misma configuración SNOM, aunque igualmente elevado teniendo en cuenta la ecuación 5.2. El valor experimental encontrado en la medida de SNOM, obliga nuevamente a pensar en que el material se está comportando como una red de guías de onda.

La figura 5.33 muestra la imagen obtenida en la misma configuración SNOM, pero cuando la polarización es perpendicular al eje óptico. En esta ocasión se observa un contraste óptico mas débil con la misma periodicidad de $2.4 \mu\text{m}$. Del perfil del contraste óptico en transmisión a lo largo de la línea marcada en la imagen SNOM, representado en la figura 5.33b, se obtiene un valor de $(\Delta I/I)_T \sim 9 \%$, cerca de tres veces menor al obtenido cuando la polarización era paralela al eje óptico.

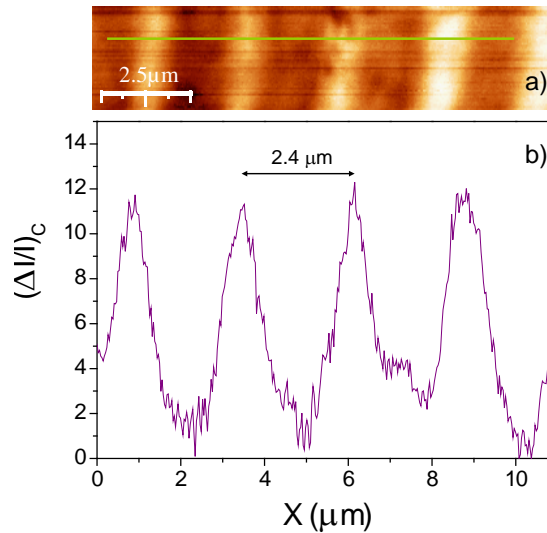


Figura 5.33 a) Imagen SNOM del patrón de franjas en la muestra de LN:Fe en polarización perpendicular al eje c; b) perfil del contraste óptico en colección a lo largo de la línea verde dibujada en a)

El efecto observado en los valores de la modulación de los contrastes ópticos medidos en función de la polarización, está relacionado claramente con el diferente valor de la variación de índice de refracción en la dirección del eje extraordinario (Δn_e , paralelo al eje c) y en el eje ordinario (Δn_o , perpendicular al eje c). La variación del índice de refracción al aplicar un campo eléctrico (efecto electroóptico lineal) se puede expresar como:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \sum_k r_{ijk} E_k \quad (5.4)$$

donde E_k es la componente del campo eléctrico aplicada y r_{ijk} son los elementos del tensor electroóptico. Para el caso del LN al aplicar el campo en la dirección del eje z se llega a las siguientes expresiones para Δn_e y Δn_o :

$$\begin{aligned} \Delta n_e &= \frac{1}{2} n_e^3 r_{33} E_z \\ \Delta n_o &= \frac{1}{2} n_o^3 r_{13} E_z \end{aligned} \quad (5.5)$$

siendo $r_{33} = 32.2$ pm/V y $r_{13} = 10$ pm/V los coeficientes del tensor electroóptico involucrados para este caso, y $n_e = 2.2$ y $n_o = 2.28$ los índices de refracción extraordinario y ordinario del LN respectivamente. De las ecuaciones 5.5 se deduce que

$$\frac{\Delta n_e}{\Delta n_o} \approx 2.89, \text{ valor que coincide con el cociente entre la modulación del contraste óptico}$$

medido con polarización paralela al eje extraordinario y la modulación del contraste óptico medido con polarización paralela al eje ordinario $\frac{(\Delta I/I)_e}{(\Delta I/I)_o} \approx \frac{25}{9} \approx 2.8$.

Los perfiles SNOM obtenidos pueden ser simulados mediante el modelo BPM descrito anteriormente para el caso del BNN en el modo de SNOM en colección, tomando el índice de refracción del LN como $n = 2.23$. Se presenta en la figura 5.34 la dependencia del valor de la modulación del contraste óptico en función de la magnitud de la modulación del índice de refracción Δn . Como era de esperar por los resultados previos obtenidos en las muestras con dominios ferroeléctricos periódicos, el contraste óptico aumenta cuando lo hace Δn .

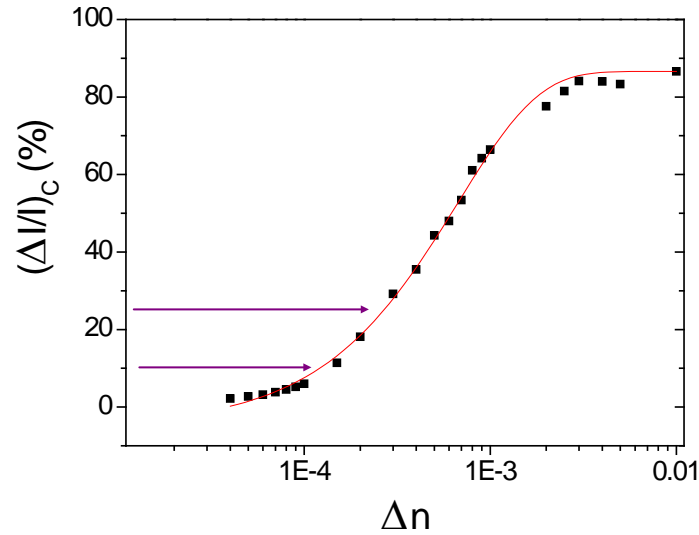


Figura 5.34 Dependencia del contraste óptico en función de la variación del índice de refracción. Las flechas indican los valores experimentales correspondientes a las dos polarizaciones utilizadas

A partir del resultado expresado en la figura 5.34 y por comparación con las medidas experimentales del SNOM, se puede asignar que el valor de la variación de índice de refracción ordinario es de $1,2 \cdot 10^{-4}$ y de $2,8 \cdot 10^{-4}$ para el caso del índice de refracción extraordinario.

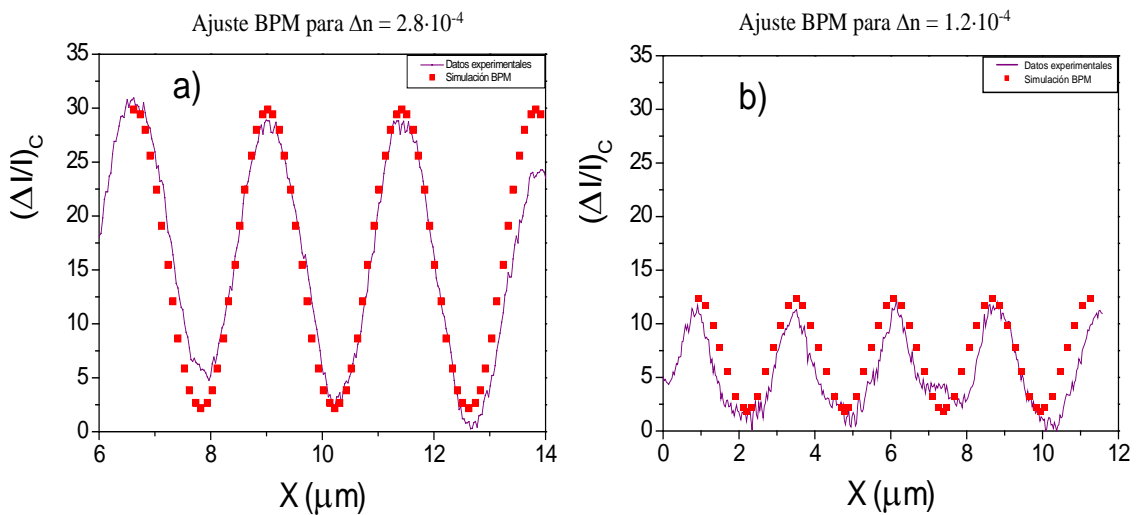


Figura 5.35 a) Ajuste BPM para el caso de polarización paralela al eje c y b) ajuste BPM para el caso de polarización perpendicular al eje c

Considerando los valores de Δn obtenidos de la gráfica representada en la figura 5.34, se pudo reproducir satisfactoriamente la forma sinusoidal de la modulación de contraste óptico medido experimentalmente para las dos polarizaciones, como puede verse en la figura 5.35. Además el valor $\left(\frac{\Delta n_e}{\Delta n_o}\right)_{\text{exp.}} \approx 2.3$ es comparable al valor teórico antes mencionado, 2.89. La diferencia observada podría deberse tanto a errores en la determinación de las direcciones ópticas, como en la orientación de la muestra.

En los apartados anteriores se discutió como la modulación de la intensidad de la luz transmitida o reflejada observada en muestras con dominios ferroeléctricos periódicos, se debía a la aparición de una modulación del índice de refracción asociada con los dominios ferroeléctricos. Se consideraron dos posibles mecanismos como responsables de este efecto, uno relacionado con la carga inducida por la diferente polarización de los dominios a 180° presentes en las muestras y otro asociado a los cambios estructurales alrededor de las barreras de los dominios ferroeléctricos. Para el caso de las muestras estudiadas de BNN y LN impurificadas con iones de tierras raras en las que los dominios ferroeléctricos periódicos se formaban durante el crecimiento, el efecto frontera se consideró como el más plausible. Como se ha mencionado al principio de esta sección el efecto fotorefractivo induce una distribución espacial del campo eléctrico $E(x)$ que genera las variaciones del índice de refracción (efecto Pockels) en el interior de la zona en donde se han producido el patrón de interferencias. Nos encontramos por tanto una situación diferente a la anteriormente descrita, en donde el cambio en Δn se centraba alrededor de las fronteras de los dominios. En el caso que ahora nos ocupa el cristal de LiNbO_3 es monodominio y la modulación del índice de refracción se debe a la variación espacial de la carga producida por el patrón de interferencias. El origen por tanto de la presencia de una modulación en el índice de refracción, se asemejaría más a la idea que asocia la aparición de Δn con la carga inducida por la diferente polarización de los dominios a 180° [10], que como se verá en el siguiente apartado, este puede ser el caso cuando los dominios ferroeléctricos periódicos son creados mediante la aplicación de un campo eléctrico.

5.1-4 El tantalato de litio

La obtención de dominios ferroeléctricos periódicos en LiTaO_3 (LT) se realizó mediante la aplicación de un campo eléctrico pulsado (ver capítulo 4), obteniéndose la estructura de dominios ferroeléctricos representada esquemáticamente en la figura 5.36. Dicha estructura consiste en dos bloques fundamentales de dominios opuestos, denominados A y B, que se repiten a lo largo de toda la muestra siguiendo la secuencia ABAABAB (denominada súper estructura de Fibonacci). Los tamaños de A y B son L_A y L_B respectivamente, donde $L_A = l_{A1} + l_{A2}$ y $L_B = l_{B1} + l_{B2}$, cuyos valores en este caso son $l_{A1} = l_{B1} \sim 5.5 \mu\text{m}$, $l_{A2} \sim 4.6 \mu\text{m}$ y $l_{B2} \sim 8.9 \mu\text{m}$. Esta estructura está optimizada para la generación de segundo armónico en la región del infrarrojo cercano [18].

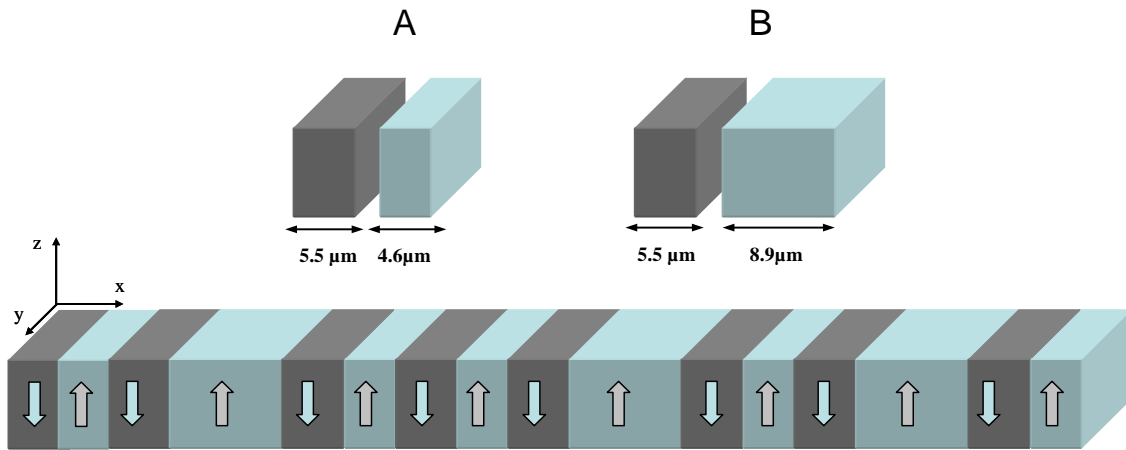


Figura 5.36 Esquema de la estructura de dominios creada en la muestra y los tamaños de cada uno de los dominios.

5.1-4.1 Caracterización morfológica de las estructuras de LT

Para determinar experimentalmente la estructura de dominios ferroeléctricos presente en el cristal de LT, se sometió la muestra a un ataque químico diferencial similar al realizado en las otras dos muestras anteriormente descritas. En la figura 5.37 se observa una imagen de AFM de la cara en la que se depositaron los electrodos periódicos para producir la inversión de los dominios ferroeléctricos. Puede verse claramente como el ataque químico revela el patrón y las periodicidades antes mencionados. De la imagen de AFM se puede deducir igualmente que dado que las áreas del cristal atacadas, las cuales muestran una profundidad aproximada de 25 nm, se

relacionan con los dominios negativos, los dominios grises de la figura 5.36 se corresponderán entonces con los dominios ferroeléctricos negativos de la muestra, mientras que los de color azul claro equivalen a los dominios positivos.

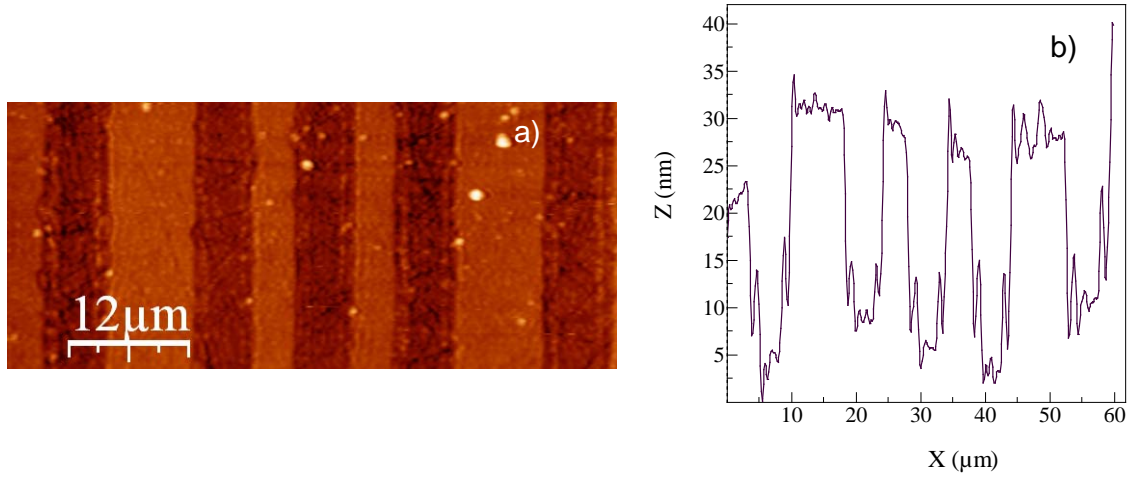


Figura 5.37 Imagen de AFM de la cara del cristal en la que se depositaron los electrodos metálicos. Se observa claramente el patrón de dominios presente en la muestra de LT y de su perfil correspondiente, se pueden obtener los tamaños de los dominios ferroeléctricos medidos experimentalmente, que fueron $l_{A1} = l_{B1} = 5.76 \mu\text{m}$, $l_{A2} = 4.4 \mu\text{m}$ y $l_{B2} = 8.7 \mu\text{m}$

Observando la topografía de la cara opuesta del cristal (figura 5.38), que era en la que se había depositado el electrodo continuo, se ve como era de esperar que ahora los dominios atacados son los que alternan su tamaño (color azul claro en la figura 5.36) y aunque la resolución de la estructura es menos nítida, básicamente se reproduce el mismo patrón de dominios ferroeléctricos que en la otra cara. El hecho de que estén peor definidos indica que la inversión de dominios no fue completamente homogénea a lo largo de todo el cristal.

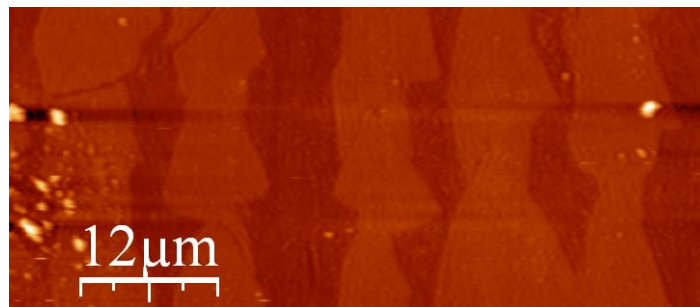


Figura 5.38 Imagen AFM de la cara del cristal de LT en la que se depositó el electrodo continuo. Se ve como la estructura obtenida es la inversa a la presentada en la figura 5.37

5.1-4.2 Resultados de los experimentos de SNOM

Una vez eliminado todo rastro del ataque químico diferencial mediante técnicas de pulido, se comenzó la caracterización de la muestra mediante la técnica SNOM. En la figura 5.39a se presenta una imagen de SNOM en modo reflexión, en la que se puede observar un claro contraste óptico de la luz retrodispersada por la muestra. En el perfil del contraste óptico en reflexión correspondiente a la imagen de SNOM (figura 5.39b), se revela la misma estructura periódica observada por AFM.

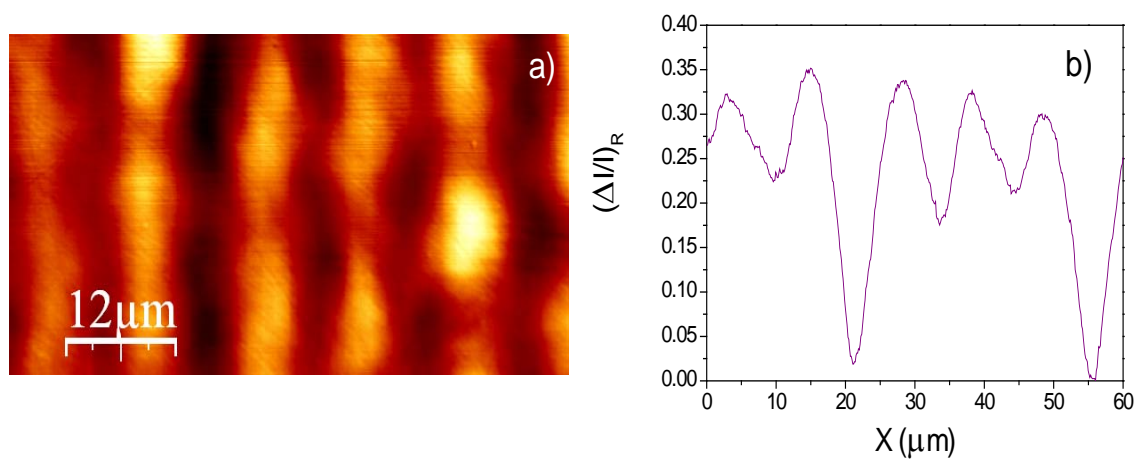


Figura 5.39 a) Imagen de SNOM en reflexión de la muestra de LT y b) perfil del contraste óptico en reflexión

El perfil de la figura 5.39 evidencia un valor para la modulación del contraste óptico en reflexión que varía entre $(\Delta I/I)_R \sim 30 \%$, para las dos depresiones más acusadas de la imagen de SNOM y un $(\Delta I/I)_R \sim 15 \%$ para el resto. De acuerdo con la experiencia adquirida en BNN y LN estos valores sugieren claramente que el material se comporta como una red de guías de onda.

Por comparación directa entre los perfiles de AFM de la muestra atacada (figura 5.37) y de SNOM de la muestra una vez pulida (figura 5.39), parece plausible la asociación mostrada en la figura 5.40 que relaciona las regiones brillantes de la imagen de SNOM con los dominios con polarización negativa (dominios grises de la figura 5.36). Por lo tanto la modulación del contraste óptico observada en este caso, no se corresponde con un efecto de la frontera de dominio, sino con una variación de índice

de refracción entre dominios adyacentes debido a la modulación espacial de la carga, según la idea propuesta por Bermúdez et al [10].

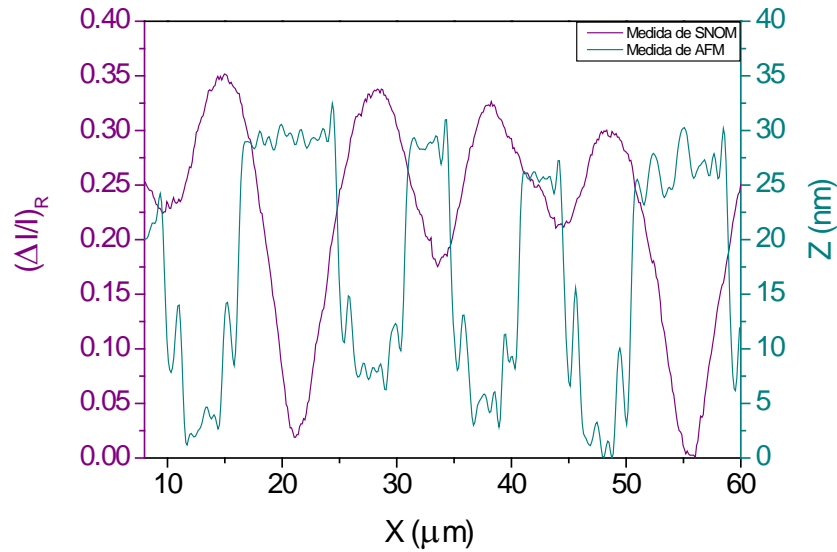


Figura 5.40 Comparación de los perfiles de AFM y SNOM, que asocia las regiones brillantes del SNOM con los dominios negativos de la muestra de LT

Como se ha mencionado anteriormente, en el presente trabajo no se ha simulado la situación de SNOM en la configuración de reflexión, de modo que de los resultados presentados en la figura 5.39 no se puede deducir un valor teórico de Δn . Para poder calcular la modulación teórica inducida en el índice de refracción es necesario disponer de imágenes y perfiles SNOM obtenidos mediante los modos de transmisión y/o colección.

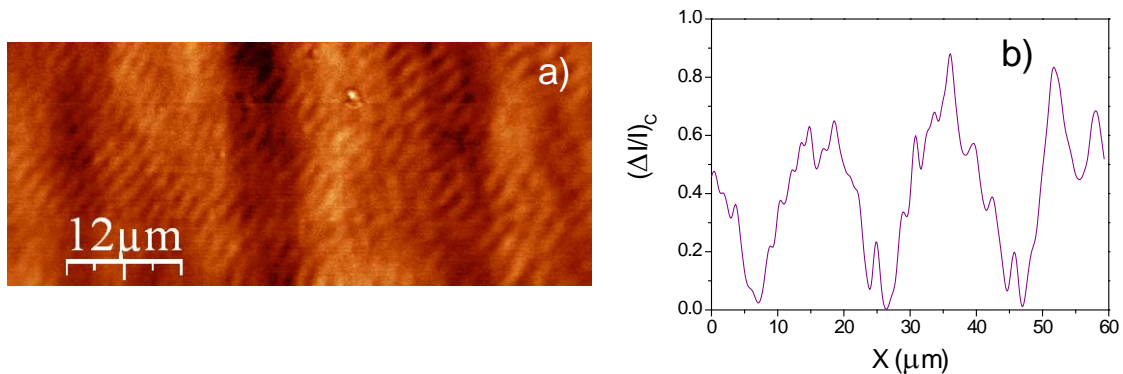


Figura 5.41 a) Imagen de SNOM en colección de la muestra de LT y b) perfil del contraste óptico en colección

La figura 5.41 presenta una imagen SNOM en el modo colección y su perfil correspondiente. Es importante destacar que el perfil no se corresponde con el presentado en la figura 5.39 como era lo esperable. El motivo de esta discrepancia puede estar relacionado con el hecho de que en la muestra de LT los dominios no crecieron homogéneamente, como se apreció en la comparación de las imágenes 5.37 y 5.38. Esto se traduce en una pérdida en la resolución espacial, que desafortunadamente impidió realizar un ajuste teórico aceptable como los presentados para las muestras de BNN y LN. En cualquier caso el alto valor medido para el contraste óptico $(\Delta I/I)_c \approx 80\%$ reafirma las conclusiones obtenidas en las muestras de BNN y LN, de que en las estructuras de dominios ferroeléctricos tiene lugar un proceso de guiado de luz.

5.2 Confinamiento de luz en materiales modificados mediante radiación láser pulsada

En esta parte del trabajo se presenta el estudio realizado en cristales de Nd:Y₃Al₅O₁₂ (Nd:YAG), destinado a la caracterización de guías de onda fabricadas por irradiación láser pulsada mediante la técnica SNOM. La fase previa a este estudio, que se presenta a continuación, consistió en la caracterización de las micro-modificaciones inducidas por la ablación láser en los cristales de Nd:YAG. Para este fin se utilizaron además de la microscopía SNOM otras técnicas como micro-luminiscencia y micro-raman, aunque en este trabajo la exposición de los resultados se centrará sobre las medidas SNOM.

La irradiación se realizó con un sistema láser titanio zafiro (spitfire, Spectra Physics), que emite pulsos láseres de 120 fs linealmente polarizados a una longitud de onda de 796 nm y con 1 KHz de coeficiente de repetición. Dicha irradiación láser se ejecutó a lo largo de la dirección de traslación de la muestra como se indica en la figura 5.42a, mientras que el daño producido se estudió sobre el plano perpendicular a la dirección de traslación. La figura 5.42b presenta una fotografía obtenida con un microscopio óptico convencional del cráter producido después de someter la muestra a

una irradiación láser de fluencia 2.75 J/cm^2 , que corresponde a un valor dos veces superior al umbral de ablación. En esta figura se indican las coordenadas espaciales que serán utilizadas para comentar las imágenes de SNOM así como los resultados de micro-luminiscencia. Como se ve, el origen (0,0) corresponde a la parte final del cono que produce la ablación y las direcciones x e y se definen como paralela y perpendicular a la superficie irradiada respectivamente.

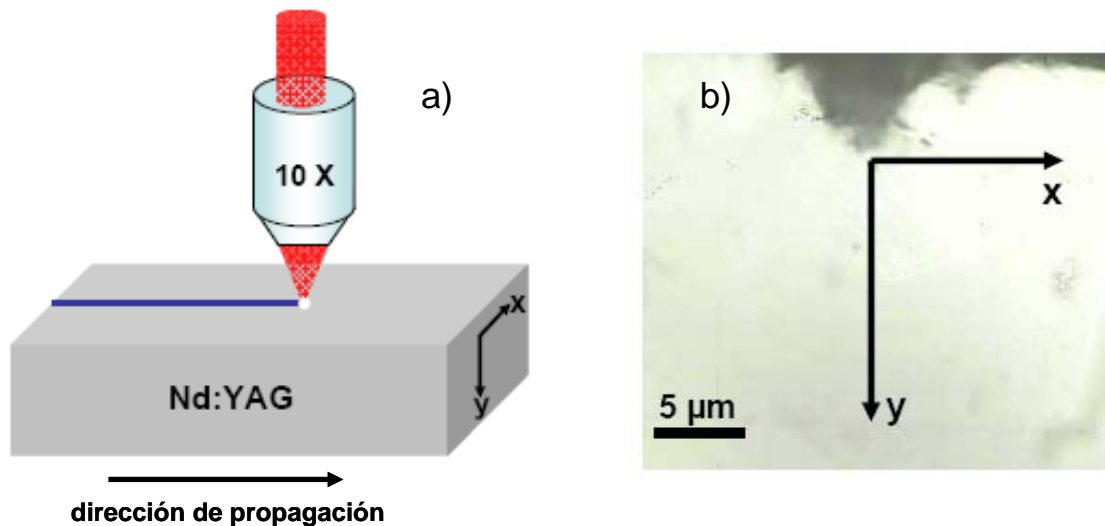


Figura 5.42 a) Esquema del proceso de escritura, b) Imagen óptica del cráter producido. Imagen obtenida de la referencia [22]

La figura 5.43 muestra las imágenes topográfica (AFM) y de SNOM trabajando en la configuración de reflexión para el mismo cráter presentado en la figura 5.42b. Para valores de la coordenada y superiores a $1 \mu\text{m}$ la imagen de AFM responde, dentro de una rugosidad típica de alrededor de 7 nm , a una superficie plana. Sin embargo en la imagen SNOM se observa un descenso en el valor de la intensidad de luz reflejada o retrodispersada, que alcanza varias micras a lo largo de la dirección de irradiación.

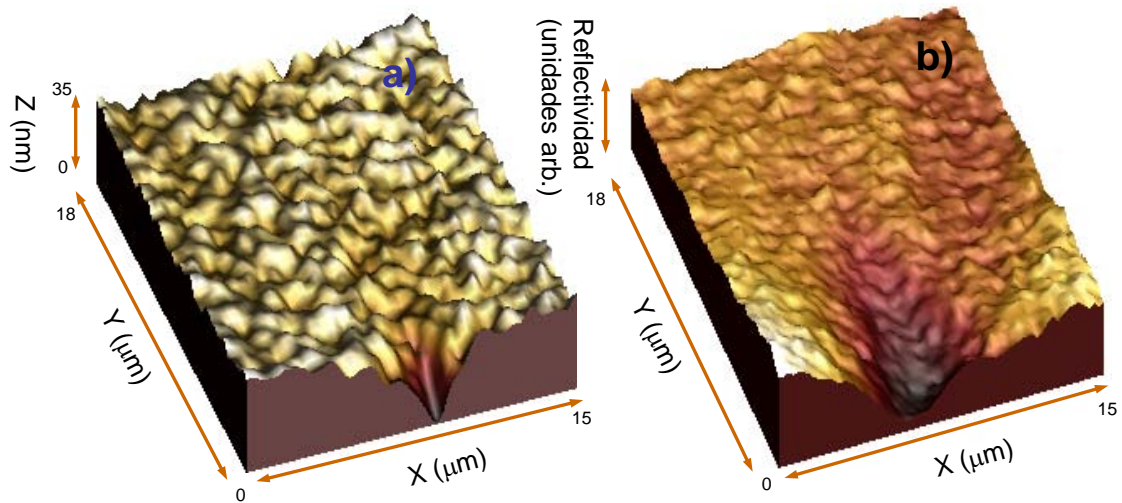


Figura 5.43 a) Imagen topográfica y b) Imagen de SNOM en reflexión de un cráter producido con una fluencia láser de 2.75 J/cm^2 la muestra de Nd:YAG

Para poner en evidencia estas diferencias entre las imágenes de SNOM y AFM los perfiles topográficos y de la intensidad de luz reflejada en las direcciones x e y se representan en la figura 5.44. Los perfiles obtenidos a lo largo de la dirección x (perfil horizontal) fueron calculados a partir de un valor de $y = 2 \text{ }\mu\text{m}$ respecto al origen (0,0) antes mencionado, de modo que se asegura que la medida se realiza fuera del cráter. Se observa claramente que mientras el perfil topográfico a lo largo de la dirección x permanece constante con una rugosidad aproximada de 7 nm , la intensidad de la luz reflejada presenta un mínimo para $x = 6 \text{ }\mu\text{m}$. En otras palabras este resultado indica que la irradiación láser ha producido cambios en la respuesta óptica que no están vinculados con efectos topográficos. Este hecho sugiere la existencia de una modificación estructural paralela a la dirección de irradiación que se extiende más allá de $10 \text{ }\mu\text{m}$, como se deduce del perfil SNOM a lo largo de la dirección y (figura 5.44b). Esta disminución del valor de la intensidad de la luz reflejada podría estar relacionada, en una primera aproximación, con una reducción del valor del índice de refracción de acuerdo con resultados previamente obtenidos por Okhrimchuk et al [23]. Sin embargo, podría también considerarse que este efecto fuera debido a un aumento de la componente de “scattering”, aunque al no detectarse cambios en la rugosidad de la muestra la hipótesis de un cambio estructural que afecta al valor del índice de refracción parece como la más plausible.

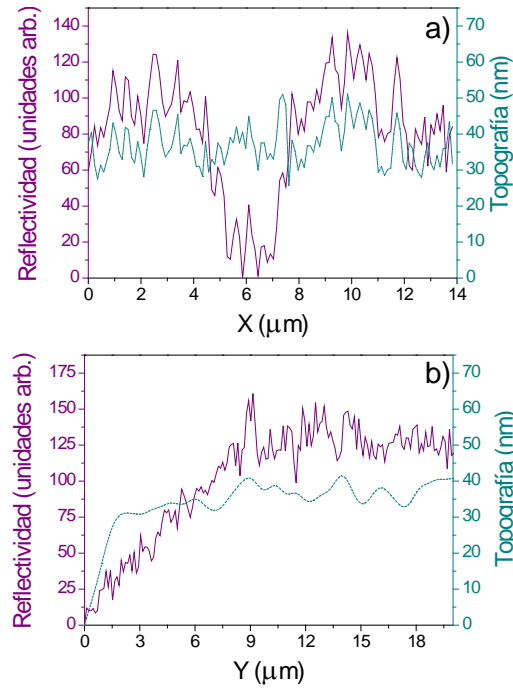


Figura 5.44 Perfiles topográfico (azul) y de reflexión (morado) obtenidos a lo largo de las direcciones X a) e Y b) respectivamente

Para asentar lo más posible esta hipótesis, se realizaron medidas de micro-luminiscencia, al ser las propiedades luminiscentes del ión Nd^{3+} sensibles al entorno cristalino en que se encuentra. Las medidas de micro-luminiscencia revelaron una reducción de la eficiencia luminiscente correspondiente a la transición $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{9/2}$, un ensanchamiento de la banda de emisión y un corrimiento de la posición del máximo de la banda hacia el rojo. La disminución de la intensidad de emisión se vio, de acuerdo con las medidas SNOM, que se extendía alrededor de $6 \mu\text{m}$ a lo largo de la dirección de irradiación [22].

Aunque el origen de las modificaciones producidas por la irradiación láser pulsada en cristales dieléctricos es todavía una cuestión abierta, existen en la literatura aproximaciones a esta cuestión. Así, es aceptado que durante la irradiación láser pulsada con una fluencia alrededor del umbral de ablación se producen una alta densidad de electrones, “Free Electron Densities” (FEDs), en la zona en que el pulso láser de femtosegundos se focaliza, dando lugar a la extracción de material en aquellas regiones en las cuales se ha sobrepasado el umbral de ablación. La extensión espacial del FEDs y por tanto de la zona de ablación depende de varios factores como: la conductividad

térmica electrónica, el parámetro Rayleigh del haz láser, el estado de la superficie irradiada y efectos que involucran procesos múltiples de ablación [24]. La presencia de un proceso rápido de pérdida de material produce intensas ondas de choque que se propagan por la muestra, de forma que en las vecindades del volumen de ablación puede tener lugar desplazamientos inducidos por estas ondas de choque mas allá del límite elástico de dicho material, produciéndose así una compresión o dilatación permanente de la red cristalina [25]. Estos cambios podrían ser los responsables de los efectos observados en las características luminiscentes del ión Nd^{3+} antes comentadas. Además, en aquellas regiones en donde no se alcance el umbral de ablación, el rápido calentamiento y enfriamiento de los FEDs podría causar un incremento del desorden local [26]. Como conclusión las medidas SNOM en la configuración reflexión han puesto de manifiesto la formación a lo largo del canal de irradiación, de modificaciones estructurales que son responsables de la disminución de la reflectividad en la superficie de la zona irradiada. De acuerdo con resultados de micro-luminiscencia, los efectos observados pueden ser explicados en términos de una modificación micro-estructural permanente, causada por ondas de choque y/o rápidos procesos de calentamiento y enfriamiento, que tienen lugar después de recibir la muestra un pulso de radiación láser de femtosegundos.

Existe en la literatura abundante información sobre este fenómeno al que se denomina modulación topográfica permanente o “*ripples*”, producidos tanto por radiación con partículas [27] como mediante radiación láser [28], siendo en este último caso la información mas restringida. Durante el transcurso de este trabajo se han observado los efectos de las ondas de choque en cristales de LiNbO_3 , tanto utilizando irradiación de iones [29] como irradiación láser pulsada [30, 31], alguno de cuyos resultados se presentan a continuación. La figura 5.45 muestra las imágenes AFM y SNOM en el modo reflexión obtenidas en cristales de LiNbO_3 irradiados con un único pulso láser de densidad de energía de 2.8 J/cm^2 [30]. En este caso el diámetro del cráter producido fue $D \sim 5 \text{ }\mu\text{m}$, con una profundidad Δ del orden de los 80 nm.

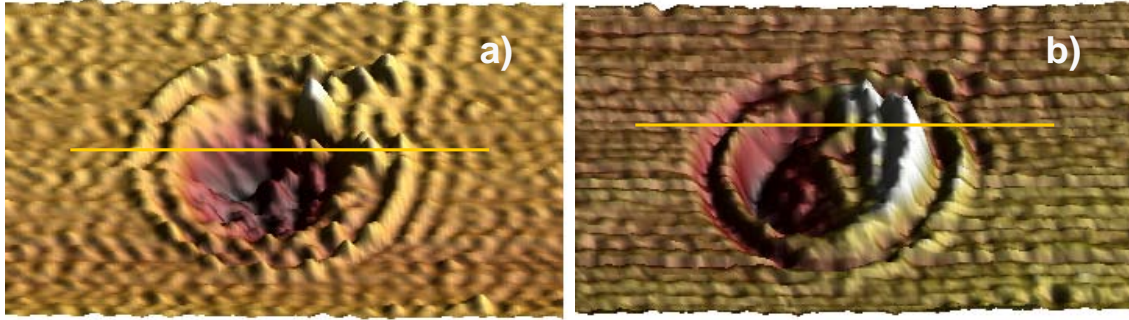


Figura 5.45 a) Imagen de AFM del cráter producido por un único pulso de densidad de energía 2.8 J/cm^2 y b) su imagen de SNOM correspondiente

Los perfiles a lo largo de la línea marcada en las imágenes anteriores se presentan en la figura 5.46. En ambos perfiles se observan fuera del cráter “ripples” de naturaleza permanente con una periodicidad de aproximadamente 800 nm que se extienden cerca de $5 \mu\text{m}$ fuera del cráter. Para densidades de energía superiores, entorno a 15 J/cm^2 , el fuerte daño producido en el cristal impide la observación de estos fenómenos.

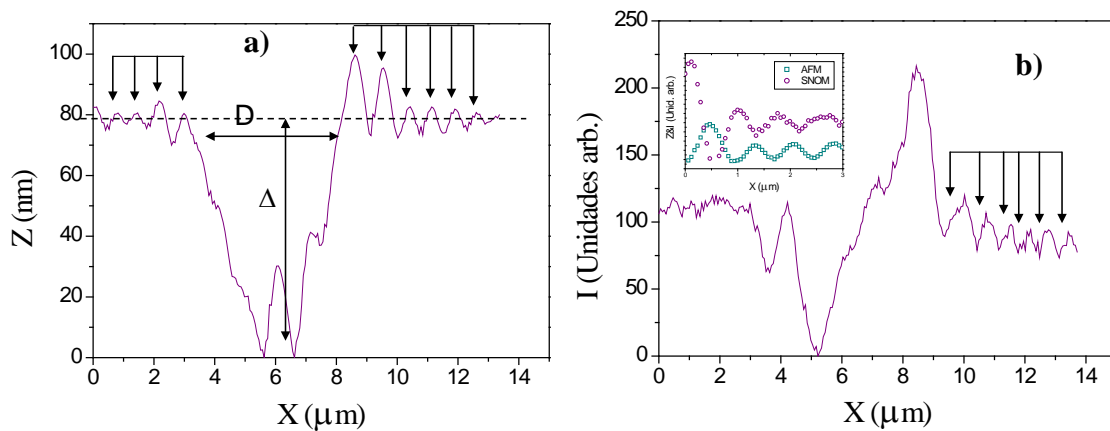


Figura 5.46 Perfiles de las imágenes de AFM a) y SNOM b) presentadas en la figura 5.45

Como se observa en el recuadro de la figura 5.46b, la posición de los máximos en la señal de AFM coinciden con los mínimos de intensidad luminosa en el perfil de SNOM. Este hecho podría indicar que la respuesta óptica de la muestra alrededor del agujero podría no ser debida a la topografía existente en la superficie de la muestra y estar relacionado con una modificación del índice de refracción producida como consecuencia de la compresión o dilatación permanente de la red cristalina. Para

comprobar este hecho se realizaron las medidas presentadas en la figura 5.47, donde se observan las imágenes AFM y SNOM en el modo reflexión de una muestra de LiNbO_3 que fue sometida a 200 pulsos láser de femtosegundos de fluencia $2\text{J}/\text{cm}^2$ [31]. Es importante destacar que en este caso las imágenes fueron obtenidas después de pulir la muestra tras la irradiación, con el fin de eliminar los efectos espurios relacionados con el daño óptico.

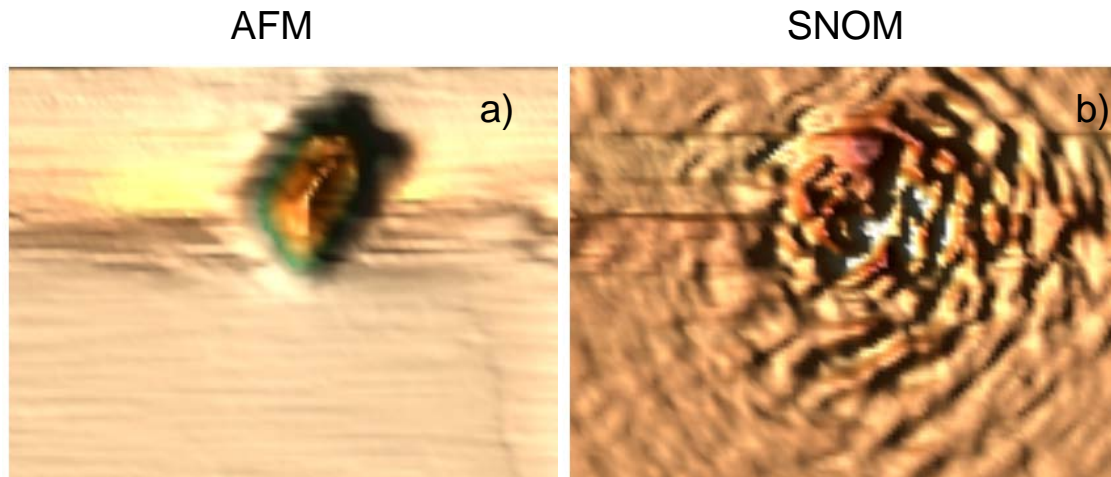


Figura 5.47 Imágenes tridimensionales de AFM a) y SNOM b) de uno de los cráteres fabricados con una fluencia láser de $2\text{J}/\text{cm}^2$

Después del pulido en la imagen de AFM solo se observa un cráter de diámetro $D \sim 1.5\ \mu\text{m}$ con una profundidad $\Delta \sim 325\ \text{nm}$ sin ninguna estructura exterior al cráter (ver figura 5.48a). Sin embargo el perfil de SNOM a lo largo de la línea marcada en la imagen indica que fuera del cráter se observa una modulación de la intensidad SNOM, que no se relaciona con ningún cambio en el perfil de AFM al examinar la misma zona. Este hecho sugiere que han tenido lugar modificaciones permanentes que han afectado al índice de refracción y por tanto a la intensidad de luz reflejada. La intensidad de estas fluctuaciones disminuye con la distancia al cráter y desaparecen para distancias superiores a $4\ \mu\text{m}$.

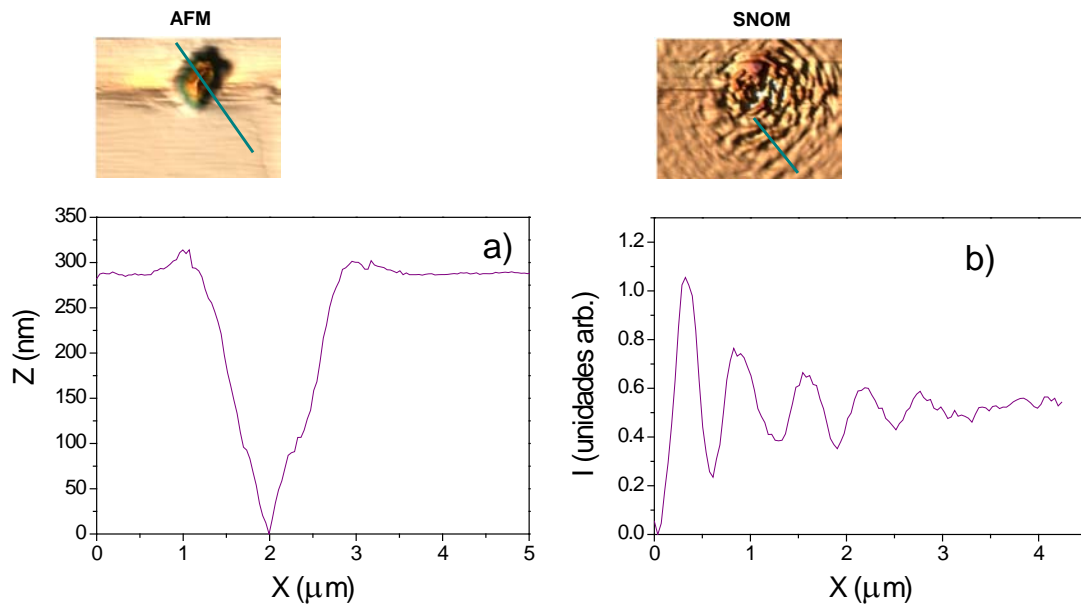


Figura 5.48 a) Perfil de AFM alrededor del cráter y b) perfil de la intensidad retrodispersada en los alrededores del mismo, a lo largo de las líneas marcadas en las imágenes de AFM y SNOM

Aunque durante el transcurso del trabajo se ha encontrado evidencia de la formación de estructuras permanentes relacionadas con ondas de choque, efectos de difracción asociados a la presencia del cráter podrían estar también presentes en las imágenes SNOM, incluso teniendo en cuenta que las mediciones se hacen en condiciones de campo cercano. Es por tanto evidente que es necesario una mayor información experimental para llegar a conclusiones mas definitivas sobre el papel de las ondas de choque en las modificaciones observadas en cristales dieléctricos sometidos a irradiación láser pulsada de femtosegundos con fluencias alrededor del umbral de ablación.

5.2-1 Caracterización SNOM de guías de onda acanaladas fabricadas mediante irradiación láser pulsada

Los resultados presentados en la sección anterior muestran que mediante irradiación con pulsos láseres de femtosegundos se puede producir una variación en el índice de refracción del material. De este modo, si dicha modificación se realiza de manera controlada se podrían fabricar dispositivos ópticos integrados como son las guías de onda. Se presenta en este apartado la caracterización mediante medidas de

SNOM, de las guías de onda fabricadas por irradiación láser pulsada en muestras cerámicas de YAG impurificadas con iones Neodimio.

5.2-1.1 Fabricación y caracterización SNOM de las estructuras de dos filamentos

La manera más sencilla de generar una guía de onda por este método consiste en producir dos regiones de menor índice de refracción, de modo que en el espacio entre ellas (región de mayor índice) se produzca un efecto de guiado de la luz. La fabricación de estas guías se realizó focalizando el haz láser, de características análogas al utilizado para producir el daño óptico superficial presentado en la sección anterior, a través de un objetivo de microscopio 10x con una apertura numérica $NA = 0.3$, aproximadamente $500\ \mu\text{m}$ por debajo de la superficie. El daño óptico se produjo a lo largo de la dirección x como se indica en la figura 5.49, con una velocidad de traslación de $50\ \mu\text{m/s}$ sobre dos líneas que llamaremos de aquí en adelante filamentos, separadas distancias de 12 y $20\ \mu\text{m}$. La fluencia del pulso láser fue de $20\ \text{J/s}$ correspondiente a un pulso de $0.8\ \mu\text{J}$. La potencia del pulso láser se estimó en $5.5\ \text{MW}$ dependiendo del valor exacto de la duración del pulso después de atravesar el objetivo del microscopio, i.e. $P \approx 6.2 P_{\text{cr}}$ con P_{cr} (potencia umbral del YAG para el fenómeno de autoenfoco) dado por la expresión:

$$P_{\text{cr}} = \lambda^2 / 2\pi n_0 n_2 \quad (5.6)$$

siendo $n_0 = 1.83$ y $n_2 = 6 \cdot 10^{-16}\ \text{cm}^2/\text{W}$ los índices de refracción lineal y no lineal del YAG [32].

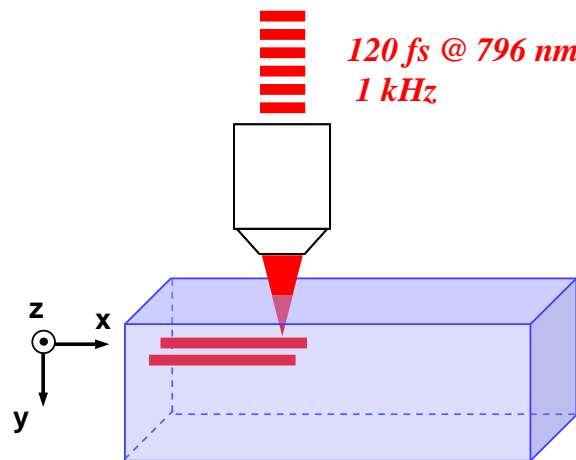


Figura 5.49 Representación esquemática de la fabricación de los filamentos en el interior del cristal mediante la técnica DLW (aunque no se presenta en la figura las regiones modificadas van de un lado al otro del cristal)

La figura 5.50a muestra una imagen de los dos filamentos obtenida con un microscopio óptico de transmisión siendo k la dirección de propagación del haz láser, E la dirección de la polarización y S la dirección de barrido o escritura de los filamentos. Focalizando el haz de un láser de He-Ne (632.8 nm) dentro del espacio entre los dos filamentos y colectando la luz que se propaga en la cara opuesta mediante un objetivo de microscopio 20x, se obtuvo la imagen que se presenta en la figura 5.50b. Es evidente a partir de este resultado que el espacio entre los dos filamentos opera como una guía de onda óptica en modo elíptico, con una relación entre el tamaño del modo a lo largo de las direcciones x e y (w_x y w_y respectivamente) de $w_x/w_y = 3$. Desde el punto de vista óptico es importante hacer notar que la guía de onda fabricada, para la longitud de onda de 632.8 nm, se comporta como multimodo.

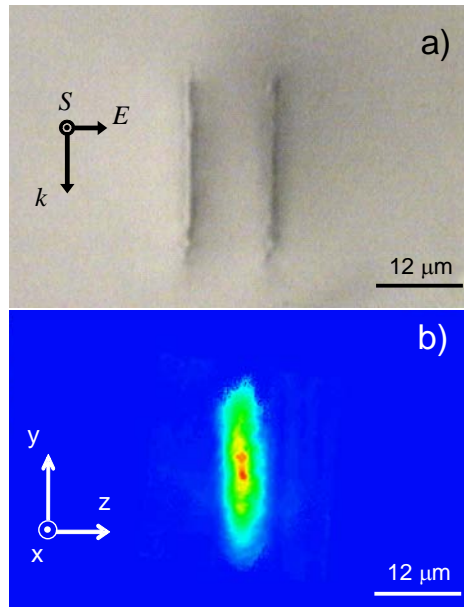


Figura 5.50 a) Imagen de transmisión óptica del doble filamento en la muestra de Nd:YAG. b) Distribución de intensidad obtenida a lo largo de la dirección x

Mediante medidas de microluminiscencia sobre la anchura de banda, eficiencia luminiscente y corrimiento hacia el rojo de la transición ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ del ión Nd^{3+} , así como a partir de las variaciones espaciales de los espectros micro-raman adscritos a la matriz cerámica YAG, se obtuvo en una primera aproximación, un mapa de la dependencia espacial del índice de refracción inducida por la irradiación pulsada láser, la cual se muestra en la figura 5.51 (una información detallada sobre este aspecto puede

encontrarla el lector en la referencia [33]). Para mayor claridad, las variaciones del índice de refracción pueden verse en esta figura a partir de los cambios de color así como por la representación de las líneas de igual índice, las cuales están separadas por un incremento de 2 para las curvas dibujadas en continuo y un decrecimiento de 0.5 para aquellas representadas por trazos discontinuos. Los valores máximos y mínimos locales son $8 \cdot 10^{-4}$ y $-2 \cdot 10^{-4}$ respectivamente.

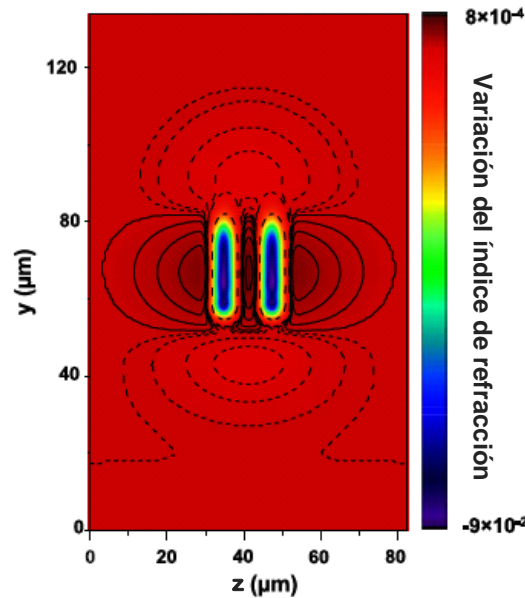


Figura 5.51 Distribución de la variación del índice de refracción del doble filamento escrito con láser en la muestra de Nd:YAG

De esta figura se deduce que:

i) Los filamentos se comportan como dos barreras con un bajo índice de refracción y son responsables del eficiente confinamiento de la luz observado entre ambos en la dirección x dando lugar por tanto a una guía de onda. El incremento del índice de refracción fuera de los filamentos está relacionado con un efecto de compresión como se comentó en el apartado anterior.

ii) En la zona exterior a ambos filamentos se observa un gradiente del valor del índice de refracción en las direcciones z e y que puede dar lugar a nuevos caminos de confinamiento óptico.

iii) Se ha evaluado a partir de las medidas de micro-luminiscencia y micro-raman que la reducción del índice de refracción en los filamentos frente a la zona entre ellos, es del orden de $9 \cdot 10^{-2}$.

Estos aspectos deducidos de las medidas de micro-luminiscencia y micro-raman, pueden ser comprobados tanto cualitativamente como cuantitativamente por medio de medidas SNOM y su simulación mediante el modelo BPM. La figura 5.52a y 5.52b muestra la imagen SNOM en 2D y 3D respectivamente obtenidas en el modo transmisión en el caso en que los filamentos están separados una distancia de $12 \mu\text{m}$.

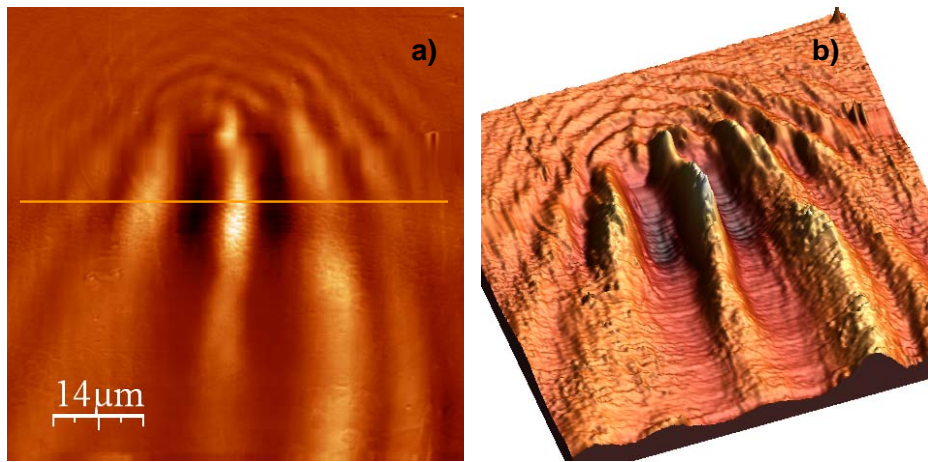


Figura 5.52 a) Imagen SNOM en transmisión de los dos filamentos separados $12 \mu\text{m}$ fabricados en la muestra de Nd:YAG y b) su imagen 3D correspondiente

En las imágenes SNOM se observan dos zonas oscuras de longitud $L \sim 18 \mu\text{m}$ separadas aproximadamente $12 \mu\text{m}$ y que se corresponden con los filamentos fabricados. El espacio entre ambos filamentos se caracteriza por un alto contraste óptico que indica el confinamiento de la luz en esa región. De la figura 5.52 se deduce también que a ambos lados de los filamentos aparecen zonas con un contraste óptico diferenciado. Estos hechos son claramente visualizados en el perfil del contraste de la intensidad de luz transmitida $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_T$ a lo largo de la línea marcada en la figura 5.52a,

figura 5.53. Puede apreciarse que entre los filamentos el valor de $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_T$ llega a ser del orden de un 90% y que a ambos lados de los filamentos se detectan valores máximos

del contraste óptico de $\sim 50\text{-}70\%$ y $\sim 40\%$ a distancias de 12 y 23 μm respectivamente del centro determinado por los filamentos. Este resultado SNOM corrobora la creación de una guía de onda entre los filamentos y apoya el hecho de que la escritura láser ha inducido una modulación del índice de refracción fuera de ellos, como se indicaba en el mapa de índices obtenido a partir de los datos de micro-luminiscencia y micro-raman.

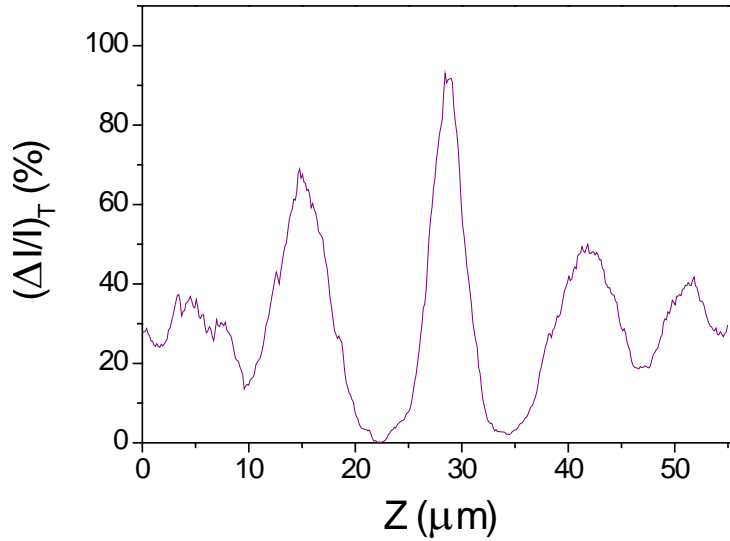


Figura 5.53 Perfil del contraste óptico de la luz transmitida a lo largo de la dirección x

La figura 5.54a presenta la imagen SNOM obtenida en el modo reflexión para el mismo par de filamentos separados 12 μm . En esta configuración las zonas oscuras debidas a los filamentos aparecen menos nítidas que en las imágenes obtenidas en la configuración SNOM en transmisión, observándose por otro lado con claridad la modulación de la intensidad de luz reflejada asociada a los cambios de índice de refracción en las direcciones z e y . En la figura 5.54b puede verse el perfil del contraste óptico en reflexión $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_R$ a lo largo de la línea dibujada sobre la imagen SNOM, donde nuevamente se alcanzan valores cercanos al 80% en la zona entre filamentos.

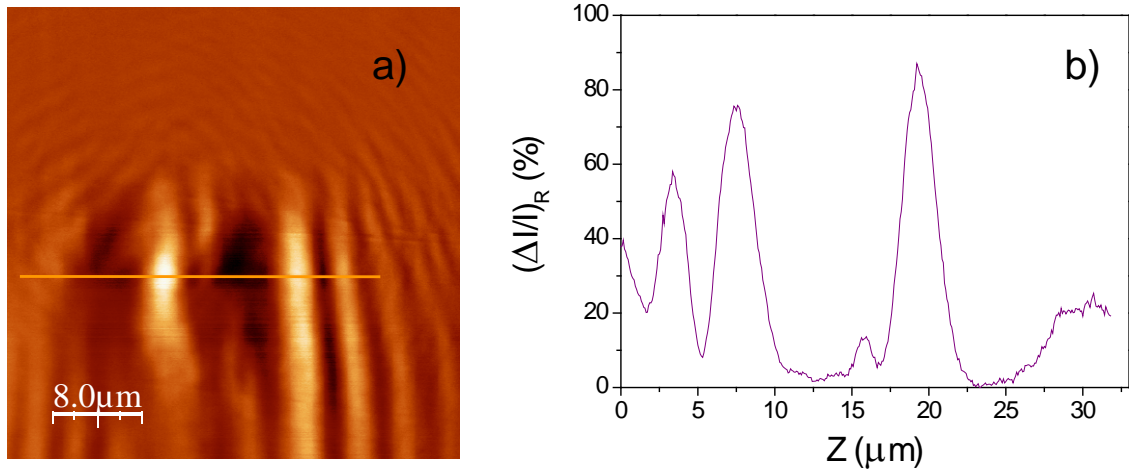


Figura 5.54 a) Imagen SNOM en reflexión de los dos filamentos separados 12 μm fabricados en la muestra de Nd:YAG y b) su perfil del contraste óptico correspondiente

De la misma manera se procedió para la caracterización los filamentos separados 20 μm . La figura 5.55a muestra la imagen SNOM en la configuración de transmisión, donde nuevamente se observa que los filamentos aparecen como áreas oscuras con una zona brillante de alto contraste óptico en el espacio de separación entre ellos. El perfil del contraste óptico en transmisión a lo largo de la línea marcada en la imagen SNOM se presenta en la figura 5.55b en donde se observa como en los casos anteriores un valor de $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_T$ cercano al 90%. En esta figura también se pone de de manifiesto el confinamiento de luz a los lados de los filamentos.

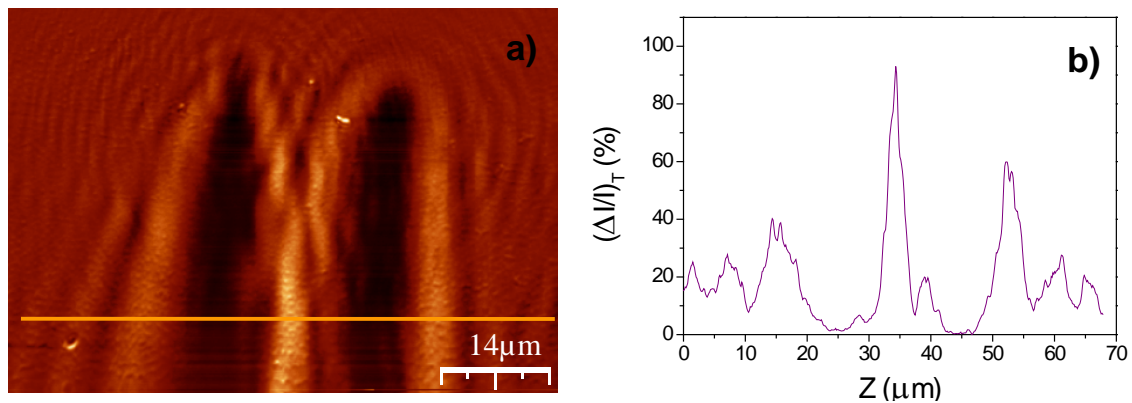


Figura 5.55 a) Imagen SNOM en transmisión de los dos filamentos separados 20 μm fabricados en la muestra de Nd:YAG y b) su perfil del contraste óptico correspondiente

El perfil del contraste óptico en transmisión en la zona entre los dos filamentos puede ser simulado mediante el modelo BPM. El mejor ajuste se obtuvo para un valor de Δn , entre los valores del índice de refracción en el área entre los filamentos y fuera de ellos, de $6 \cdot 10^{-2}$ en buen acuerdo con el calculado a partir de las medidas de micro-luminiscencia y micro-raman (ver figura 5.56). Este valor es más de un orden de magnitud mayor al encontrado en las guías de onda fabricadas a partir de los dominios ferroeléctricos periódicos. De hecho sobre estas guías (en concreto las fabricadas con los filamentos separados $20 \mu\text{m}$) se obtuvo emisión láser a $1.06 \mu\text{m}$ (correspondiente a la emisión del Nd^{3+}) con una eficiencia cuántica del 60% próxima al máximo teórico (ver referencia [34]).

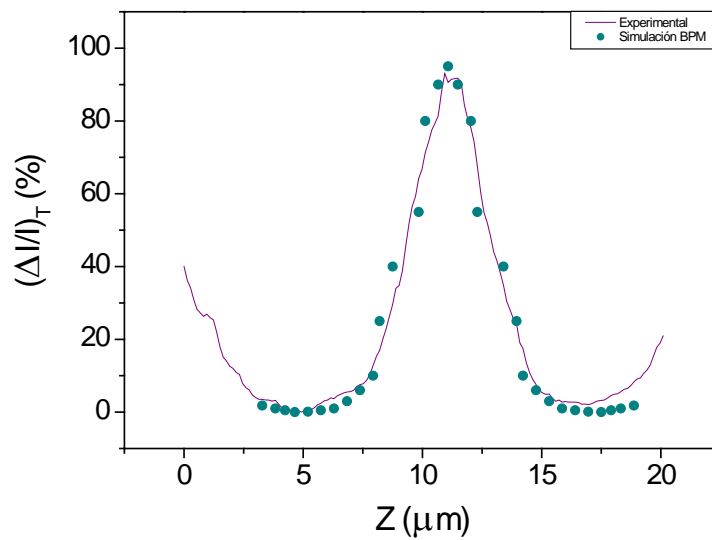


Figura 5.56 Simulación BPM y resultado experimental de la transmisión de luz en la zona entre los dos filamentos

5.2-1.2 Fabricación y caracterización SNOM de las estructuras ortogonales

El siguiente paso consistió en confinar la luz en dos dimensiones fabricando a lo largo de la muestra dos pares de filamentos ortogonales entre si. En este caso el haz del láser fue focalizado $250 \mu\text{m}$ por debajo de la superficie de la muestra mediante el mismo objetivo de microscopio 10x y $\text{NA} = 0.3$ antes utilizado. La energía del pulso láser fue de $3 \mu\text{J}$ grabando filamentos de $40 \mu\text{m}$ de longitud. En una primera etapa se produjeron dos filamentos separados $30 \mu\text{m}$ trasladando la muestra en la dirección perpendicular al haz del láser (dirección x) a una velocidad de $50 \mu\text{m/s}$. A continuación

se giro la muestra 90° y se grabaron en las mismas condiciones otros dos filamentos obteniéndose así la estructura indicada en la figura 5.57a. La posibilidad de haber fabricado así una estructura capaz de operar como una guía de onda fue comprobada acoplando la línea 632.8 nm de un láser de He-Ne. El resultado se muestra en la figura 5.57b que indica efectivamente la presencia de una guía de onda en el espacio definido por los cuatro filamentos.

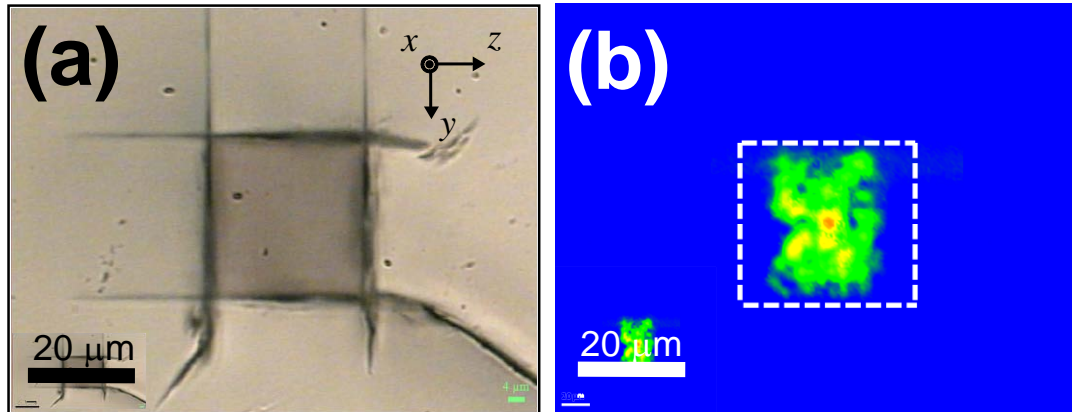


Figura 5.57 a) Imagen de transmisión óptica de la estructura cuadrada de filamentos fabricada en la muestra de Nd:YAG, donde el tamaño del lado del cuadrado es $30\ \mu\text{m}$. b) Distribución de intensidad obtenida a lo largo de la dirección x . La línea de puntos indica la posición de los filamentos.

Al igual que en el caso anterior de únicamente dos filamentos, se estudió la microluminiscencia del ión Nd^{3+} encontrándose evidencias de un corrimiento al rojo, un ensanchamiento de la banda de emisión y una disminución de intensidad para la transición $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ en la posición de los filamentos [35]. Estos resultados sugieren de nuevo que el daño inducido así como el desorden local se encuentren localizados en la posición de los filamentos. Así este daño da lugar a una compresión de la red cristalina que implica a su vez una reducción del índice de refracción en ellos que se estimó en $\Delta n \sim -10^{-2}$.

La caracterización SNOM de estas guías ópticas formadas por dos pares ortogonales de filamentos se realizó en el modo colección. En cualquier caso para obtener un mejor acoplo de la fibra óptica del SNOM con el comienzo de la guía, que como hemos indicado estaba a $250\ \mu\text{m}$ por debajo de la superficie la muestra, ésta fue

cuidadosamente pulida hasta tener el comienzo de la guía situado justo en la superficie de la muestra. Este hecho además de mejorar las medidas SNOM produjo un efecto inesperado pero útil en las imágenes de AFM, al comportarse la parte dañada de forma distinta frente al pulido apareciendo como veremos una imagen topográfica asociada a este hecho.

La figura 5.58a y 5.58b muestran las imágenes de AFM y SNOM en el modo colección respectivamente. En la imagen de AFM se aprecia el contorno del cuadrado de filamentos fabricado en la muestra, debido como acabamos de mencionar a la diferente eficiencia de pulido sobre la región de los filamentos con respecto a la superficie sin dañar. Este hecho permite fácilmente relacionar las imágenes de SNOM y AFM, concluyendo que el contraste óptico observado en la imagen de SNOM se corresponde con el interior de la estructura ortogonal de filamentos fabricada en la muestra de Nd:YAG.

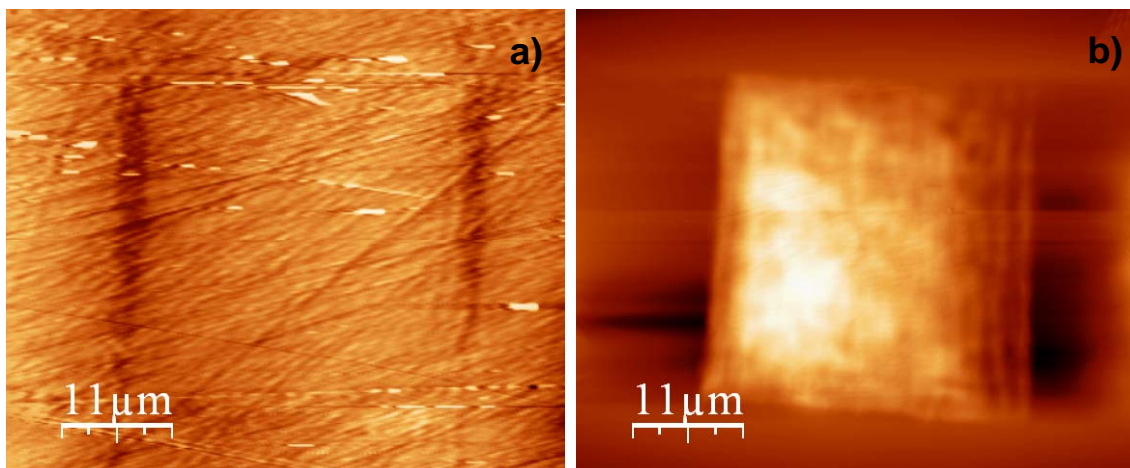


Figura 5.58 a) Imagen de AFM de la superficie de la muestra de Nd:YAG donde se aprecia la estructura fabricada. b) Imagen SNOM en colección de los filamentos

El contraste óptico que se observa en la estructura alcanza un valor medio de aproximadamente un 80% como se observa en la figura 5.59. Este dato muestra el excelente confinamiento óptico que se produce en la estructura fabricada, lo cual es una evidencia experimental de la bondad del método DLW para la fabricación de guías de onda.

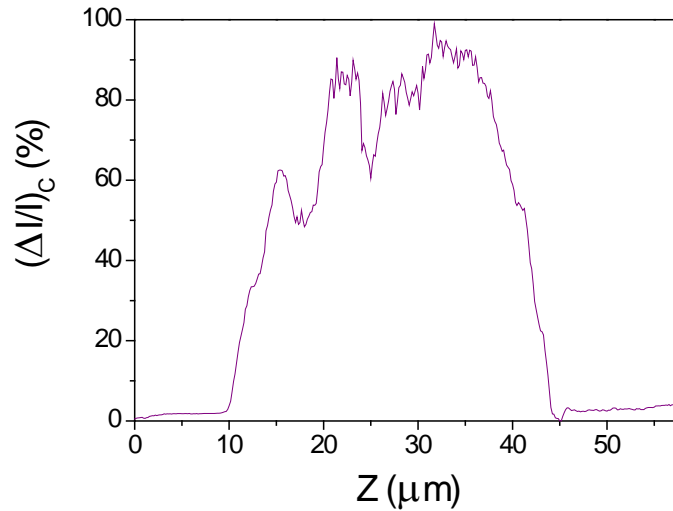


Figura 5.59 Contraste óptico de la luz colectada a través de la estructura ortogonal de filamentos fabricada en la muestra de Nd:YAG

Para estas guías de onda se comprobó su estabilidad térmica calentando la muestra durante 4 horas a diferentes temperaturas en el rango entre los 200 °C y los 1500 °C. Se encontró que la estructura era estable térmicamente hasta temperaturas del orden de los 1500 °C [35]. En el caso concreto de las medidas de SNOM mencionar que se obtuvo el mismo resultado después del calentamiento de la muestra a 1500 °C, alcanzándose de nuevo un alto confinamiento de la luz dentro de la estructura ortogonal con contrastes ópticos medios de $\sim 70\%$ como se deduce del perfil $\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_C$ mostrado en

la figura 5.60b

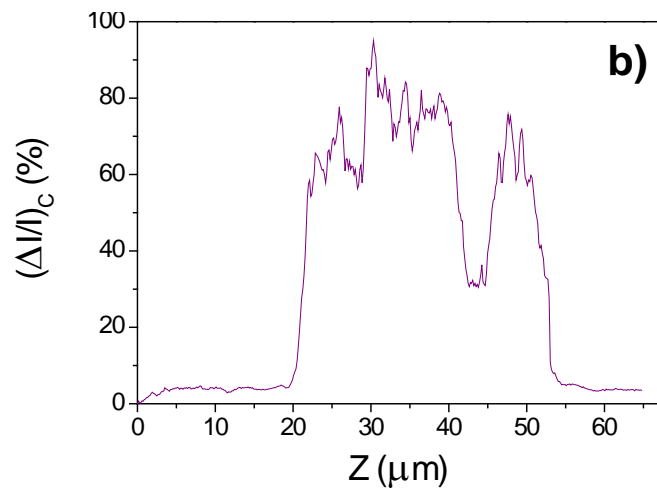
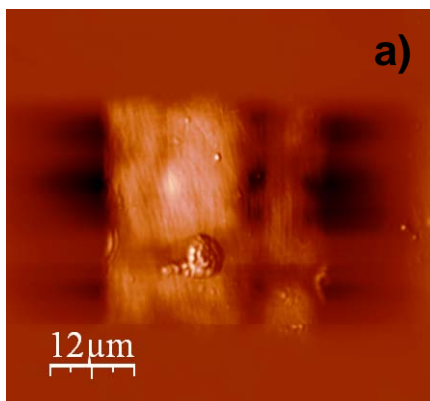


Figura 5.60 a) Imagen de SNOM en colección de la estructura de filamentos después de calentar la muestra y b) su perfil correspondiente

5.2-2 Caracterización SNOM de cristales fotónicos fabricados mediante irradiación láser pulsada

Después de la fabricación y caracterización de estructuras ópticas que confinaban la luz en una y dos dimensiones (guías de onda de dos filamentos y guías de onda ortogonales respectivamente), el objetivo se centró en el estudio de estructuras fotónicas que confinaban la luz en las tres dimensiones espaciales (un cristal fotónico), fabricadas mediante irradiación pulsada láser en cristales de $\text{LiNbO}_3\text{:Nd}$ (1%).

A la hora de fabricar un cristal fotónico es necesario confeccionar tanto la geometría de la estructura como la modulación de índice de refracción. Como ha quedado demostrado en los resultados anteriormente expuestos, mediante la técnica DLW se pueden producir de manera muy localizada modificaciones en el volumen del material, obteniéndose en ellas una reducción del índice de refracción. Un esquema del proceso de grabado se muestra en la figura 5.61. La fabricación de estas estructuras mediante la técnica DLW se realizó en la “*Swinburne University of Technology*” de Melbourne, utilizando un láser Ti:zafiro (Spitfire, Spectra Physics) que suministraba pulsos láseres linealmente polarizados de 60 fs a la longitud de onda de 800 nm, con un coeficiente de repetición de 1 KHz. La radiación láser se focalizó sobre la muestra mediante un objetivo de inmersión en aceite Olympus PlanAPO 60x de apertura numérica 1.4.

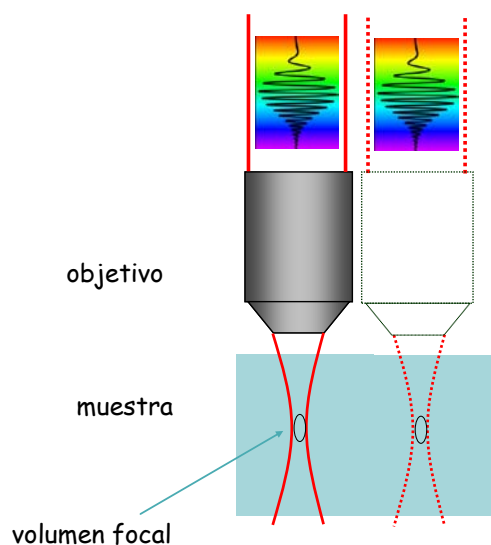


Figura 5.61 Representación gráfica de la fabricación de un cristal fotónico mediante la técnica DLW. Una vez modificada una región de la muestra, ésta se desplaza en las tres dimensiones produciendo un nuevo daño en una región diferente en el volumen del cristal

Dado que la fabricación del cristal fotónico requería la modificación del índice de refracción a diferentes profundidades en el interior de la muestra, fue necesario montar ésta en una plataforma nanoposicionadora tridimensional. Esto permite estudiar para cada profundidad la potencia láser necesaria, a fin de obtener una cierta uniformidad en la forma y en la variación de índice de refracción de cada una de las modificaciones producidas en el volumen de la muestra. Una vez optimizado el proceso de fabricación, se desarrolló una estructura consistente en 35 capas con estructura cúbica centrada en las caras (fcc) con un parámetro de red de $5\text{ }\mu\text{m}$ (ver figura 5.62). La potencia láser utilizada varió desde $40\text{ }\mu\text{W}$ para la primera capa hasta $80\text{ }\mu\text{W}$ para la capa 35, estableciéndose el número de pulsos para cada una de las modificaciones en 50 [36].

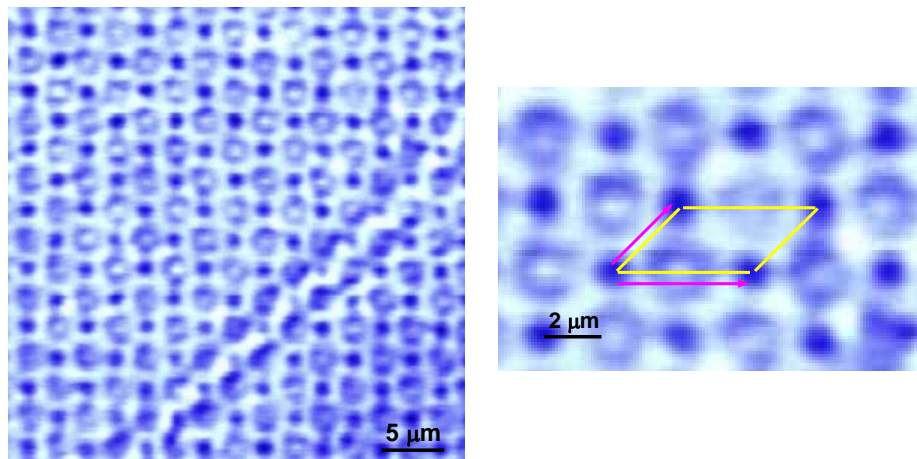


Figura 5.62 Imagen óptica de la estructura grabada en la muestra Nd:YAG donde aparece enfocada la primera capa y desenfocada la segunda. En el detalle ampliado se muestra una celda unidad (amarillo) y los vectores que la definen (rosa)

Previamente a la caracterización SNOM de la muestra se realizaron medidas de micro-raman, comprobándose que las regiones modificadas presentaban un índice de refracción entorno a 2, lo que suponía una disminución del 9% con respecto al valor del índice de refracción del LN ($n = 2.2$). De este modo la estructura obtenida presentaba una distribución periódica de regiones amorfas de bajo índice de refracción rodeadas de una matriz cristalina con un alto índice de refracción.

La caracterización de esta estructura mediante la técnica SNOM se realizó en la configuración de transmisión. En la figura 5.63 se presenta la comparación entre una

imagen de transmisión en campo lejano y la imagen de SNOM, en donde las regiones amorfas se asocian con un descenso en la intensidad de luz transmitida, como consecuencia de su menor índice de refracción.

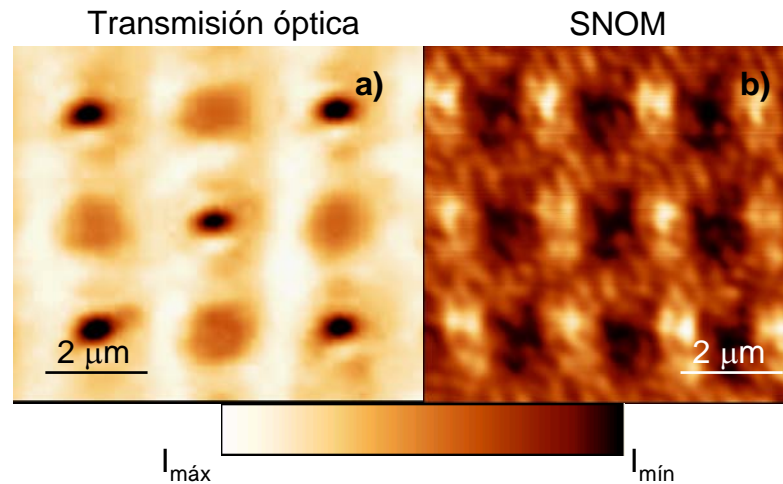


Figura 5.63 a) Imagen de transmisión óptica en campo lejano e b) imagen de SNOM de una celda fcc

De estos resultados además se observa que:

i) Las imágenes SNOM revelan un elevado contraste óptico que es mayor al observado en las imágenes de transmisión en campo lejano, donde los máximos de la intensidad de la luz transmitida se encuentran entre las capas verticales de la estructura a lo largo del eje óptico de la muestra. Este hecho se observa más claramente en la figura 5.64 (c y d), en donde se representa el perfil de la intensidad transmitida a lo largo de las líneas marcadas en las imágenes correspondientes al régimen en campo lejano (figura 5.64a) y SNOM (figura 5.64b) respectivamente.

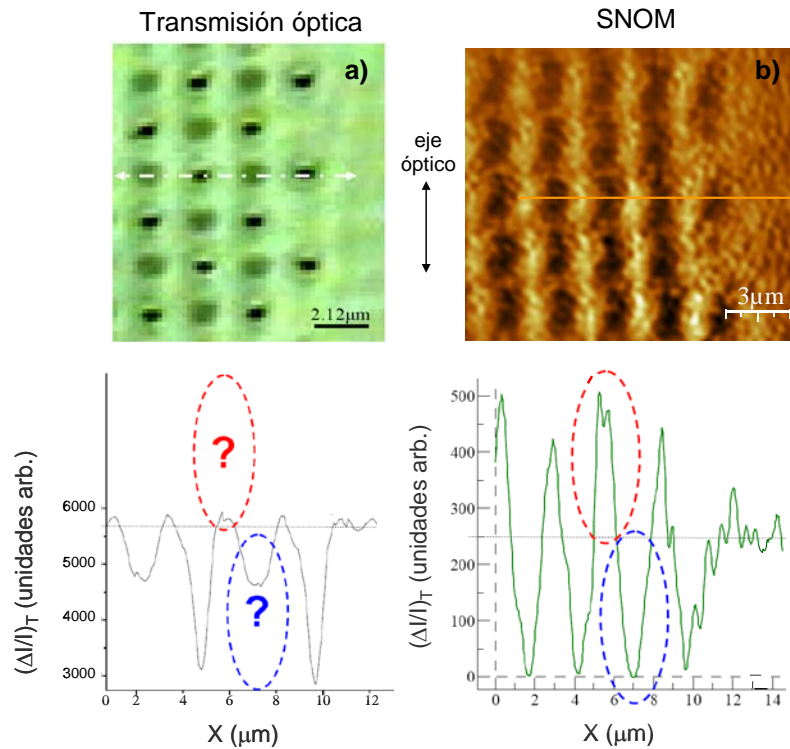


Figura 5.64 a) Imagen y perfil de transmisión óptica en campo lejano. b) Imagen y perfil de SNOM en modo transmisión de la estructura fotónica fabricada en la muestra de LN

Destacar de los perfiles que mientras para los resultados de SNOM existe un claro aumento de la intensidad transmitida entre las regiones amorfas a lo largo del eje óptico, para el caso de transmisión en campo lejano este efecto está prácticamente inhibido (marcado con un círculo rojo en la figura 5.64).

ii) La periodicidad observada en el SNOM, 2.5 μm, es la mitad que la periodicidad de la estructura fabricada. Este resultado claramente induce que en la imagen de SNOM se está observando prácticamente el mismo contraste óptico para la primera capa que para las siguientes, a diferencia de lo observado en los resultados de transmisión en campo lejano (marcado con un círculo azul en la figura 5.64).

Estos dos resultados sugieren que se está produciendo un efecto de confinamiento óptico asociado al diferente valor del índice de refracción entre las regiones amorfas modificadas mediante la radiación láser y los alrededores de las mismas, que es el responsable del elevado contraste óptico observado. A pesar de que los resultados obtenidos son preliminares y se necesitaría una más amplia información

experimental para dilucidar este punto, estos resultados son muy prometedores en relación al uso de la técnica DLW para la obtención de cristales fotónicos.

Bibliografía

- [1] K.S. Rao, K.H. Yoon, “Review of electrooptic and ferroelectric properties of barium sodium niobate single crystals”, *J. Mater. Sci.* **38**, 391 (2003)
- [2] A.L. Aleksandrovskii, A.I. Nagaev, “Electrooptic diffraction in polydomain barium sodium niobate crystals”, *Phys. Status Solidi A* **78**, 431 (1983)
- [3] A. Rodenas, D. Jaque, F. Agulló-Rueda, A.A. Kaminskii, “Self-activated $\text{Nd}^{3+}:\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ optical super-lattices: Micro characterization and non collinear laser light generation”, *Opt. Común.* **262**, 220 (2006)
- [4] J. Lamela, F. Jaque, E. Cantelar, D. Jaque, A.A. Kaminskii, G. Lifante, “BPM simulation of SNOM measurements of waveguide arrays induced by periodically poled BNN crystals”, *Opt. Quant. Electron.* **39**, 805 (2007)
- [5] L.G. Vanuiter, J.J. Rubin, W.A. Bonner, “Growth of $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ single crystals for optical applications”, *J. Quant. Electron.* **4**, 622 (1968)
- [6] S. Kim, V. Gopalan, “Optical index profile at an antiparallel ferroelectric domain wall in lithium niobate”, *Mater. Sci. Eng. B* **120**, 91 (2005)
- [7] M. Müller, E. Soergel, K. Buse, C. Langrock, M.M. Fejer, “Investigation of periodically poled lithium niobate crystals by light diffraction”, *J. Appl. Phys.* **97**, 044102 (2005)
- [8] J. Lamela, A. Ródenas, G. Lifante, D. Jaque, F. Jaque, A.A Kaminskii, “Effects of laser light confinement in periodically poled orthorhombic non centrosymmetric $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ crystals”, *Laser Phys. Lett.* **5**, 291 (2008)
- [9] I.P. Radko, V.S. Volkov, S.I. Bozhevolnyi, J. Henningsen, J. Pedersen, “Near-field mapping of surface refractive-index distributions”, *Lasers Phys. Lett.* **2**, 440 (2005)
- [10] V. Bermúdez, A. Gil, L. Arizmendi, J. Colchero, A. Baró, E. Diéguez, “Techniques of observation and characterization of the domain structure in periodically poled lithium niobate”, *J. Mater. Res.* **15**, 2814 (2000)
- [11] Y. Lu, T. Wei, F. Duewer, Y. Lu, N.B. Ming, P.G. Schultz, X.D. Xiang, “Non-destructive imaging of dielectric constant profiles and ferroelectric domains with a scanning-tip microwave near-field microscope”, *Science* **276**, 2004 (1997)
- [12] T.P.J. Han, F. Jaque, J. Lamela, D. Jaque, G. Lifante, F. Cussó, A.A. Kaminskii, “The effect of the ferroelectric domain walls in the scanning near field optical microscopy response of periodically poled $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ and LiNbO_3 crystals”, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 042201 (2009)

-
- [13] S. Singh, D.A. Draegert, J.E. Geusic, "Optical and ferroelectric properties of barium sodium niobate", *Phys. Rev. B* **2**, 2709 (1970)
- [14] V. Bermúdez, M.D. Serrano, E. Diéguez, "Bulk periodic poled lithium niobate crystals doped with Er and Yb", *J. Crystal Growth* **200**, 185 (1999)
- [15] D.M. Gill, J.C. Wright, L. McCaughan, "Site characterization of rare-earth doped LiNbO_3 using total site selective spectroscopy", *Appl. Phys. Lett.* **64**, 2483 (1994)
- [16] E. Cantelar, J.A. Sanz-García, R.E. di Paolo, J.E. Muñoz-Santiuste, F. Cussó, "On-centered growth of periodically poled $\text{LiNbO}_3\text{:Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ crystals", *Ferroelectrics* **334**, 125 (2006).
- [17] N.B. Ming, J.F. Hong, D. Feng, "The growth striations and ferroelectric domain structures in Czochralski-grown LiNbO_3 single-crystals", *J. Mat. Sci.* **17**, 1663 (1982)
- [18] Z.D. Xie, G. Zhao, P. Xu, Z.D. Gao, S.N. Zhu, "Study of optical elastic scattering in a quasiperiodically poled LiTaO_3 crystal", *J. Appl. Phys.* **101**, 056104 (2007)
- [19] L. Arizmendi, "Photonic applications of lithium niobate crystals", *Phys. Stat. Sol. (a)* **201**, 253 (2004).
- [20] N.V. Kukhtarev, V.B. Markov, S.G. Odulov, M.S. Soskin, V.L. Vinetskii, "Holographic storage in electrooptic crystals", *Ferroelectrics* **22**, 949 & 961 (1979)
- [21] C. Denz, M. Schwab, C. Weilnau, "Transverse-pattern formation in photorefractive optics", Book Series: Springer tracts in modern physics (2003)
- [22] J. Lamela, A. Ródenas, D. Jaque, F. Jaque, G.A. Torchia, C. Méndez, L. Roso, "Near-field optical and micro-luminescence investigations of femtosecond laser micro-structured Nd:YAG crystals", *Opt. Express* **15**, 3285 (2007)
- [23] G. Okhimchuk, A.V. Shestakov, I. Krushchev, J. Mitchell, "Depressed cladding, buried waveguide laser formed in a YAG:Nd^{3+} crystal by femtosecond laser writing", *Opt. Lett.* **30**, 2248 (2005)
- [24] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tunnermann, B.N. Chichkov, B. Wellegehausen, H. Welling, "Ablation of metals by ultrashort laser pulses", *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2716 (1997)
- [25] X.Z. Zeng, X.L. Mao, S.B. Wen, R. Greif, R.E. Russo, "Energy deposition and shock wave propagation during pulsed laser ablation in fused silica cavities", *J. Phys. D* **37**, 1132 (2004)

-
- [26] A. Ródenas, D. Jaque, G.A. Torchia, C. Méndez, I. Arias, L. Roso, P. Moreno, F. Agulló-Rueda, “Femtosecond laser induced micromodifications in Nd:SBN crystals: Amorphization and luminescence inhibition”, *J. Appl. Phys.* **100**, 113517 (2006)
- [27] J. Olivares, G. García, F. Agulló-López, F. Agulló-Rueda, A. Kling, J.C. Soares, “Generation of amorphous surface layers in LiNbO₃ by ion-beam irradiation: thresholding and boundary propagation”, *Appl. Phys. A* **81**, 1465 (2005)
- [28] J. Bonse, S. Baudach, J. Kruger, W. Kautek, M. Lenzner, “Femtosecond laser ablation of silicon-modification thresholds and morphology”, *Appl. Phys. A* **74**, 19 (2002)
- [29] A. García-Navarro, F. Agulló-López, J. Olivares, J. Lamela, F. Jaque, “Femtosecond laser and swift-ion damage in lithium niobate: A comparative analysis”, *J. Appl. Phys.* **103**, 093540 (2008)
- [30] J. Lamela, G. Lifante, T.P.J. Han, F. Jaque, A. García-Navarro, J. Olivares, F. Agulló-López, “Morphology of ablation craters generated by fs laser pulses in LiNbO₃”, *Appl. Surf. Sci.* **255**, 3918 (2009).
- [31] J. Lamela, D. Jaque, A. Ródenas, F. Jaque, G.A. Torchia, J.R. Vázquez, C. Méndez, L. Roso, “Near-field-optical-microscopy studies of micro-modifications caused by femtosecond laser irradiation in lithium niobate crystals”, *Appl. Phys. A* **93**, 177 (2008)
- [32] www.baikowskichimie.com
- [33] A. Ródenas, G.A. Torchia, G. Lifante, E. Cantelar, J. Lamela, F. Jaque, L. Roso, D. Jaque, “Refractive index change mechanisms in femtosecond laser written ceramic Nd:YAG waveguides: micro-spectroscopy experiments and beam propagation calculations”, *Appl. Phys. B* **95**, 85 (2009).
- [34] G.A. Torchia, A. Ródenas, A. Benayas, E. Cantelar, L. Roso, D. Jaque, “Highly efficient laser action in femtosecond-written Nd:yttrium aluminium garnet ceramic waveguides”, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 111103 (2008)
- [35] A. Benayas, W.F. Silva, C. Jacinto, E. Cantelar, J. Lamela, F. Jaque, J.R. Vazquez de Aldana, G.A. Torchia, L. Roso, A.A. Kaminskii, D. Jaque, “Thermally resistant waveguides fabricated in Nd:YAG ceramics by crossing femtosecond damage filaments”, *Opt. Lett.* **35**, 330 (2010)
- [36] A. Ródenas, G. Zhou, D. Jaque, M. Gu, “Direst laser writing of three-dimensional photonic structures in Nd:yttrium aluminum garnet laser ceramics”, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 151104 (2008).

6 Conclusiones finales

1.- Se ha puesto en marcha un microscopio óptico de campo cercano (*scanning near field optical microscope*, SNOM) que puede trabajar en los modos denominados de reflexión, transmisión, y colección con una resolución inferior a los 100 nm.

2.- Se ha desarrollado un modelo de propagación de haces (*beam propagation method*, BPM) para simular los resultados experimentales sobre el confinamiento óptico observado tanto en las estructuras ópticas asociadas a los dominios ferroeléctricos periódicos, como en los dispositivos fabricados mediante radiación pulsada láser.

3.- Se ha encontrado en los cristales de BNN y LiNbO_3 con dominios ferroeléctricos periódicos creados durante el proceso de crecimiento mediante el método denominado “Czochralski fuera de eje”, un fuerte contraste óptico en la aproximación de campo cercano que alcanza valores cercanos al 80% en la muestra de BNN. Los resultados experimentales indican que las estructuras formadas por la presencia de dominios ferroeléctricos periódicos, se comportan como superredes ópticas debido a la modulación Δn del índice de refracción inducida por la presencia de dichos dominios ferroeléctricos periódicos.

4.- La simulación mediante el modelo BPM ha permitido obtener el valor de la modulación del índice de refracción que ha resultado ser de $\Delta n \approx 1.5 \cdot 10^{-4}$ para las muestras de BNN y de $\Delta n \approx 10^{-4}$ para los cristales de LN. Estos valores coinciden con los calculados a partir de las figuras de difracción obtenidas en campo lejano.

5.- Como consecuencia de la variación observada del valor de Δn con la periodicidad de los dominios periódicos, se propone que la modulación del índice de refracción esta relacionada con cambios estructurales asociados a las fronteras de los dominios.

6.- En las muestras de LiTaO_3 , en las cuales los dominios periódicos se han formado por la aplicación de un campo eléctrico externo, se han observado también altos contrastes ópticos SNOM asociados a la presencia de dichos dominios ferroeléctricos. En este caso la modulación del índice de refracción esta relacionada más con la diferente polarización de los dominios que con cambios estructurales alrededor de las fronteras de dominio.

7.- Se ha realizado un estudio SNOM sobre redes de difracción fotorefractivas en LiNbO_3 impurificado con iones Fe^{3+} . La simulación mediante el método BPM arrojó un valor de la modulación del índice de refracción inducido de $\Delta n \approx 1.2 \cdot 10^{-4}$ para la polarización paralela y $\Delta n \approx 2.8 \cdot 10^{-4}$ para la polarización perpendicular, que están en muy buen acuerdo con los calculados a partir de los valores de la eficiencia de difracción de la red fotorefractiva.

8.- Mediante la técnica SNOM se ha estudiado las modificaciones que induce la irradiación con un haz láser pulsado de femtosegundos de longitud de onda $\lambda = 796 \text{ nm}$ en cristales de Nd:YAG. Se ha encontrado que la zona dañada presenta una disminución del índice de refracción debido a la formación de defectos o amorfización del material. Por otro lado alrededor de las zonas dañadas se ha observado un incremento del índice de refracción que posibilita la fabricación de guías ópticas con dimensiones de micras.

9.- Se han obtenido mediante radiación láser pulsada guías de onda ópticas en Nd:YAG que han sido caracterizadas mediante la microscopía SNOM.

6 Final conclusions

1.- A scanning near-field optical microscope (SNOM) that can work in the Reflection, Transmission and Collection configurations with a resolution below 100 nm it has been start on.

2.- It has developed a beam propagation model (BPM) to perform simulations of the experimental results associated to the optical confinement in structures associated with the presence of ferroelectric domains periods and waveguides fabricated by pulsed laser radiation.

3.- It has been found in BNN and LiNbO_3 crystals containing periodic ferroelectric domains formed during the crystal growth by the “off-axis Czochralski method” a strong optical contrast reaching a level closed to 80% in BNN. The experimental results indicate that the structures formed by the presence of periodic ferroelectric domains act as optical superlattice due to modulation of refractive index Δn induce by the periodic ferroelectric domains.

4.- The simulation using the BPM model has allowed us to calculate the refractive index modulation value which has proven to be $\Delta n \approx 1.5 \cdot 10^{-4}$ for samples of BNN and

$\Delta n \approx 10^{-4}$ for LN crystals. These Δn values are in agreement with the diffraction patterns observed in far field conditions.

5.- As a consequence of the Δn variation observed with the periodicity of the periodic domain, is proposed that the modulation of the refractive index is related to structural changes associated to domain boundaries.

6.- In TiNbO₃ samples, in which periodic domains were formed by applying an electric field, a high SNOM optical contrast associated with the presence of ferroelectric domains has also been found . In this case the refractive index modulation induced by the presence of periodic ferroelectric domains has been related more to the different electric polarization of the domains that structural changes surrounding the domain boundaries.

7.- A SNOM study in photorefractive gratings writing in LiNbO₃ samples doped with Fe³⁺ ions has been carried out. The simulation using the BPM method gives a value of the refractive index modulation $\Delta n \approx 1.2 \cdot 10^{-4}$ for light polarization parallel and $\Delta n \approx 2.8 \cdot 10^{-4}$ for perpendicular light polarization, in very good agreement with the values calculated from the diffraction efficiency of photorefractive grating.

8.- Using SNOM technique it has been investigated the changes induced by irradiation with a femtosecond pulsed laser beam in LN crystals. It has been found that refractive index in the optical damage areas decrease due to the formation of defects and amorphization processes. By contrast, around the damage areas, an increase of the refractive index was observed.

9.- Using femtosecond pulsed laser, optical waveguides in Nd:YAG have been written and characterized by the SNOM technique.

Lista de publicaciones:

A continuación se presenta la lista cronológica de publicaciones a las que ha dado lugar esta tesis doctoral, así como otras publicaciones obtenidas con experimentos cuyos resultados no han sido presentados en este trabajo:

- J. Lamela, A. Rodenas, D. Jaque, G. Lifante, G.A. Torchia, C. Méndez, L. Roso, F. Jaque, “Near-field optical and micro-luminescence investigations of femtosecond laser micro-structured Nd:YAG crystals”, *Optics Express* **15**, 3285-3290 (2007)
- J. Lamela, F. Jaque, E. Cantelar, D. Jaque, A.A. Kaminskii, G. Lifante, “BPM simulation of SNOM measurements of waveguide arrays induced by periodically poled BNN crystals”, *Optical and Quantum Electronics* **39**, 805-811 (2007)
- J. Lamela, A. Rodenas, G. Lifante, D. Jaque, F. Jaque and A.A. Kaminskii, “Effects of laser light confinement in periodically poled orthorhombic non-centrosymmetric $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ crystals”, *Laser Physics Letters* **5**, 291–295 (2008)
- G. Lifante, J. Lamela, E. Cantelar, D. Jaque, F. Cussó, S.N. Zhu, F. Jaque, “Periodic ferroelectric domain structures characterization by Scanning Near Field Optical Microscopy”, *Ferroelectrics* **363**, 187-198 (2008)
- J. Lamela, D. Jaque, A. Rodenas, F. Jaque, G.A. Torchia, J.R. Vazquez, C. Mendez, L. Roso, “Near-field-optical-microscopy studies of micro-modifications caused by femtosecond laser irradiation in lithium niobate crystals”, *Applied Physics A* **93**, 177-181 (2008)
- J. Lamela, G. Lifante, T.P.J. Han, F. Jaque, A. Garcia-Navarro, J. Olivares, F. Agulló-López, “Morphology of ablation craters generated by fs laser pulses in LiNbO_3 ”, *Applied Surface Science* **255**, 3918-3922 (2009)
- T.P.J. Han, F. Jaque, J. Lamela, D. Jaque, G. Lifante, F. Cussó, A.A. Kaminskii, “The effect of the ferroelectric domain walls in the scanning near field optical microscopy response of periodically poled $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ and LiNbO_3 crystals”, *Journal of Physics-Condensed Matter* **21**, 042201 (4pp) (2009)
- A. Rodenas, G.A. Torchia, Lifante G, Cantelar E, Lamela J, Jaque F, Roso L, Jaque D, “Refractive index change mechanisms in femtosecond laser written ceramic Nd:YAG waveguides: micro-spectroscopy experiments and beam propagation calculations”, *Applied Physics B-Lasers and Optics* **95**, 85-96 (2009)

- A. Benayas, W.F. Silva, C. Jacinto, E. Cantelar, J. Lamela, F. Jaque, J.R. Vázquez de Aldana, G.A. Torchia, L. Roso, A.A. Kaminskii, D. Jaque, “Thermally resistant waveguides fabricated in Nd:YAG ceramics by crossing femtosecond damage filaments”, *Optics Letters* **35**, 330-332 (2010)

Otras publicaciones:

- F. Perales, F. Agulló-Rueda, J. Lamela, C de las Heras, “Optical and structural properties of $\text{Sb}_2\text{S}_3/\text{MgF}_2$ multilayers for laser applications”, *Journal of Physics D: Applied Physics* **41**, 045403 (5pp) (2008)
- A. García-Navarro, F. Agulló-López, J. Olivares, J. Lamela, F. Jaque, “Femtosecond laser and swift-ion damage in lithium niobate: A comparative analysis”, *Journal of Applied Physics* **103**, 093540 (10pp) 2008
- J. Canet-Ferrer, J. Martinez-Pastor, E. Cantelar, F. Jaque, J. Lamela, F. Cussó, G. Lifante, “Near-field scanning optical microscopy to study nanometric structural details of LiNbO_3 Zn-diffused channel waveguides”, *Journal of Applied Physics* **104**, 094313 (6pp) (2008)
- A. Rodenas, J. Lamela, F. Jaque, D. Jaque, G.A. Torchia, C. Mendez, J.R.V. de Aldana, L. Roso, “Damage channelling in femtosecond laser micro-structured SBN crystals”, *Applied Surface Science* **255**, 3132-3136 (2008)
- A. Rodenas, J. Lamela, D. Jaque, G. Lifante, F. Jaque, A. Garcia-Martin, G.Y. Zhou, M. Gu, “Near-field imaging of femtosecond laser ablated sub-lambda/4 holes in lithium niobate”, *Applied Physics Letters* **95**, 181103 (3pp) (2009)